

Quanten-Monte-Carlo- Untersuchungen von null-, ein- und zweidimensionalen Spinsystemen

Von der Fakultät für Elektrotechnik, Informationstechnik, Physik
der Technischen Universität Carolo-Wilhelmina zu Braunschweig

zur Erlangung des Grades eines Doktors
der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)

genehmigte Dissertation

von Niklas Casper
aus Braunschweig

eingereicht am: 18.05.2021
Disputation am: 14.09.2021

1. Referent: Prof. Dr. Wolfram Brenig
2. Referentin: Prof. Dr. Gertrud Zwicknagl

Druckjahr: 2021

Dissertation an der Technischen Universität Braunschweig,
Fakultät für Elektrotechnik, Informationstechnik, Physik

Für Katharina, Frida und Theo

Quanten-Monte-Carlo-Untersuchungen von null-, ein- und zweidimensionalen Spinsystemen

In dieser Dissertation werden die Thermodynamik und Anregungen von Quantenspinsystemen untersucht. Dazu wird hauptsächlich die numerische Quanten-Monte-Carlo-Methode basierend auf der stochastischen Reihenentwicklung verwendet. Diese Methode wird mit einer ergänzenden Ringaustauschwechselwirkung zwischen vier Spins implementiert und zur Betrachtung von anisotropen Systemen und zur Messung des dynamischen Strukturfaktors weiterentwickelt.

Der Spin-1/2-Heisenberg-Würfel wird in einem externen Magnetfeld für verschiedene Systemgrößen untersucht. Die Änderung der Systemgröße zeigt in den thermodynamischen Größen eine Veränderung, die das Quanten- bzw. Nanoverhalten widerspiegelt. Damit ist es möglich eine Systemgröße festzulegen, bei der Quanteneigenschaften von Nanoteilchen eine wichtige Rolle spielen.

Danach wird die Spindynamik eindimensionaler Spinketten untersucht. Dabei sind die statischen und dynamischen Eigenschaften der alternierenden ferro- und antiferromagnetischen Spin-1/2-Kette bei endlichen Temperaturen von Interesse. Dabei wird ein Übergang von schwach gekoppelten Dimeren zu Haldane-Ketten-Verhalten ohne quantenkritischen Punkt beobachtet. Die Störungstheorie eines dispersiven Triplon-Gases beschreibt den Grenzfall der Dimere gut. Im anderen Grenzfall weist das System ähnlich zur Haldane-Kette eine endliche Spinlücke auf. Anschließend wird die anisotrope antiferromagnetische Spin-1-Kette untersucht. Die Spindynamik im Hochtemperaturbereich zeigt dabei das Verhalten einer Haldane- bzw. Néel-Phase. Dieses Verhalten konnte durch einen Vergleich mit Berechnungen der dynamischen Quanten-Typikalität bestätigt werden.

Zuletzt werden zweidimensionale Spin-1/2-XY-Ferromagneten mit Ringaustausch untersucht. Erst wird die Rolle der Trimerisierung auf dem Kagome-Gitter betrachtet. Es wird eine Reskalierung der Austauschparameter bezüglich der Trimerisierung vorgestellt, wodurch die Physik weitgehend mit dem isotropen Fall übereinstimmt. Das Quantenphasendiagramm zeigt eine superfluide und eine \mathbb{Z}_2 -Quantenspinflüssigkeitsphase. Danach wird ein Modell auf dem Quadratgitter mit einer zusätzlichen anisotropen übernächsten-Nachbar-Wechselwirkung untersucht, welches drei langreichweitig geordnete Phasen aufweist. Im Grenzfall starker Anisotropie wird das System auf einem Dreiecksgitter dargestellt und es existiert kein Phasenübergang. In diesen Modellen kann die lineare Spinwellentheorie die Anregungen in der superfluiden Phase gut beschreiben.

Quantum Monte Carlo studies of zero-, one- and two-dimensional spin systems

In this thesis the thermodynamics and excitations of quantum spin systems are investigated. The properties are obtained mainly by the quantum Monte Carlo method based on the stochastic series expansion. The method is implemented with an additional ring exchange between four spins and is further developed to study anisotropic models and to measure the dynamical structure factor.

First, the spin-1/2 Heisenberg cube is investigated in an external magnetic field for different system sizes. The change of the system size shows a change in the thermodynamic quantities which reflects the transition from quantum to nano-behavior. Thus, it is possible to determine a system size in which quantum properties of nanoparticles play an important role.

Second, the spin dynamics of one-dimensional spin chains is studied. On the one hand, static and dynamical properties of the alternating ferro-antiferromagnetic spin-1/2 chain at finite temperatures are investigated. A transition from a weakly coupled dimer chain to Haldane chain behavior without an intermediate quantum critical point is observed. The limit of weakly coupled dimers can be described by a perturbation theory of a dispersive triplon gas. In the other limit, the system exhibits a finite spin gap similar to the Haldane chain. On the other hand, the anisotropic antiferromagnetic spin-1 chain is investigated. The spin dynamics at high temperatures shows the behavior of the Haldane and Néel phase. Moreover these findings are compared with dynamical quantum typicality calculations and are shown to be consistent with the latter.

Third, planar XY spin-1/2 ferromagnets with ring exchange are explored. The role of trimerization on the kagome lattice is investigated. It is shown that with a proper rescaling of the exchange parameters regarding the trimerization, the physics of the model can largely coincide with the isotropic case. The quantum phase diagram shows a superfluid and a \mathbb{Z}_2 quantum spin liquid phase. Extending the analysis, a model on a square lattice with an additional anisotropic next nearest neighbour coupling is investigated and shows three long-range ordered phases for various ring exchanges. In the limiting case of large anisotropy, the model is investigated on the triangular lattice and no phase transition exists. In these models, the long-ranged phase is well described by linear spin wave theory.

Publikationen

Teilergebnisse dieser Dissertation wurden bereits mit Genehmigung der zuständigen Stelle der Fakultät für Elektrotechnik, Informationstechnik, Physik der Technischen Universität Braunschweig vorab veröffentlicht.

- [R1] **N. Casper**, W. Brenig,
Breathing kagome XY quantum magnet with four-site ring exchange,
Phys. Rev. B **103**, 094434 (2021).
Preprint: <https://arxiv.org/abs/2010.00014>
DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.103.094434>
- [R2] **N. Casper**, W. Brenig,
Finite temperature properties of alternating ferro-antiferromagnetic Heisenberg chains,
arXiv:2001.04696.
Preprint: <https://arxiv.org/abs/2001.04696>
- [R3] J. Richter, **N. Casper**, W. Brenig, R. Steinigeweg,
Magnetization dynamics in clean and disordered spin-1 XXZ chains,
Phys. Rev. B **100**, 144423 (2019).
Preprint: <https://arxiv.org/abs/1907.03004>
DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.100.144423>

Abschlussarbeiten

Außerdem sind die Beschreibungen der genutzten Methoden in Kapitel 2 und die thermodynamischen Quanten-Monte-Carlo-Ergebnisse in Abschnitt 4.1 bereits teilweise in vorangegangenen Abschlussarbeiten diskutiert worden.

- [R4] **N. Casper**, Masterarbeit, Technische Universität Braunschweig, 2016.
- [R5] **N. Casper**, Bachelorarbeit, Technische Universität Braunschweig, 2014.

Tagungsbeiträge

Weiterhin wurden Teilergebnisse dieser Arbeit auf verschiedenen Konferenzen vorgestellt.

- **N. Casper**, W. Brenig,
Stochastic analytic continuation of Quantum Monte Carlo data,
Poster, DPG Frühjahrstagung Dresden, 2017.
- **N. Casper**, B. Celan, L. Heinze, B. Köhler, J. Richter,
PhD Symposium - Quantum Magnets: Frustration and Topology in Experiment and Theory,
Organisation, DPG Frühjahrstagung Dresden, 2017.
- **N. Casper**, W. Brenig,
Quantum Monte Carlo study of an alternating $J_1 - J_2$ Quantum Spin Chain,
Poster, NTH International Workshop Goslar, 2017.
- **N. Casper**, W. Brenig,
Alternating ferro- and antiferromagnetic Heisenberg chain: from dimer to Haldane limit,
Vortrag, DPG Frühjahrstagung Berlin, 2018.
- **N. Casper**, W. Brenig,
Alternating ferro- and antiferromagnetic Heisenberg chain: from dimer to Haldane limit,
Poster, WE-Heraeus-Seminar *Trends in Quantum Magnetism* Bad Honnef, 2018.
- **N. Casper**, W. Brenig,
Magnetic properties of the Breathing Kagome Lattice $S = 1/2$ XY Model with Four-Site Ring Exchange,
Poster, DPG Frühjahrstagung Regensburg, 2019.
- T. Viereck, M. Bertke, **N. Casper**, E. Peiner, W. Brenig,
Junior Research Group NP2 - Nanoparticle Characterization,
Vortrag, QUANOMET-Day Hannover, 2019.

Kurzfassung	iv
Abstract	v
Vorveröffentlichungen	vi
1. Einleitung	1
2. Quanten-Monte-Carlo-Methode	15
2.1. Monte-Carlo-Sampling	16
2.2. Stochastische Reihenentwicklung	18
2.2.1. Bond- vs. Plaquette-Operatoren	18
2.2.2. Entwicklung der Zustandssumme	20
2.2.3. Diagonal-Update	21
2.2.4. Loop-Update	22
2.2.5. Mutlibranch-Cluster-Update	26
2.2.6. Struktogramm	28
2.3. Observablen	29
2.3.1. Energie	29
2.3.2. Magnetisierung	29
2.3.3. Suszeptibilität	30
2.3.4. Spinsteifigkeit	30
2.3.5. Binning	31
2.3.6. Strukturfaktoren	31
2.4. Maximum-Entropie-Methode	37
3. Quantenverhalten in Nanosystemen	47
3.1. Antiferromagnetischer Spin-1/2-Heisenberg-Würfel	49
3.1.1. Lineare Spinwellentheorie	50
3.1.2. Thermodynamik ohne Magnetfeld	52
3.1.3. Thermodynamik im Magnetfeld	54
3.1.4. Zusammenfassung	56

4. Spindynamik von Heisenberg-Ketten	59
4.1. Alternierende ferro-antiferromagnetische Spin-1/2-Kette	61
4.1.1. Magnetische Suszeptibilität	62
4.1.2. Dynamischer Strukturfaktor	64
4.1.3. Verlauf der Lücke	68
4.1.4. Zusammenfassung	69
4.2. Anisotrope antiferromagnetische Spin-1 XXZ-Kette	70
4.2.1. Dynamischer Strukturfaktor	71
4.2.2. Zusammenfassung	73
5. Quantenphasen in planaren XY-Systemen mit Ringaustausch	75
5.1. Trimerisiertes Kagome-XY-Modell mit Ringaustausch	79
5.1.1. Lineare Spinwellentheorie	81
5.1.2. Spinsteifigkeit	83
5.1.3. Quantenphasendiagramm	87
5.1.4. Statischer Spin-Strukturfaktor	88
5.1.5. Dynamischer Spin-Strukturfaktor	89
5.1.6. Zusammenfassung	92
5.2. XY-Modell vom Quadrat- zum Dreiecksgitter	93
5.2.1. Lineare Spinwellentheorie	95
5.2.2. Spinsteifigkeit	99
5.2.3. Longitudinaler statischer Spin-Strukturfaktor	101
5.2.4. Transversaler dynamischer Spin-Strukturfaktor	102
5.2.5. Quantenphasendiagramm	103
5.2.6. Zusammenfassung	105
6. Fazit	107
A. Literaturverzeichnis	113
B. Danksagung	126

Quantenmagnetismus ist ein aktives Gebiet der Physik der kondensierten Materie. Untersuchungen an Quantenmagneten wurden bereits mehrfach mit dem Physik-Nobelpreis gewürdigt, beispielsweise im Jahr 1970 an Louis Néel „für seine grundlegenden Leistungen und Entdeckungen betreffend den Antiferromagnetismus und den Ferrimagnetismus, die zu wichtigen Anwendungen in der Festkörperphysik geführt haben“, im Jahr 1977 an Philip W. Anderson, Nevill F. Mott und John H. Van Vleck „für die grundlegenden theoretischen Leistungen zur Elektronenstruktur in magnetischen und ungeordneten Systemen“, im Jahr 2016 an David J. Thouless, F. Duncan M. Haldane und J. Michael Kosterlitz „für theoretische Entdeckungen topologischer Phasenübergänge und topologischer Materiephasen“ und weitere Nobelpreise im Bereich der Quantenmechanik [6]. Die Quantenmagnete finden dabei Anwendung in verschiedenen Gebieten, beispielsweise in Speichertechnologien wie Kernspeichern [7, 8], in der Spintronik [9], in der Spin-Kaloritronik [10], in den Materialwissenschaften [11], in ultrakalten atomaren Gasen [12], und beim Einsatz in Quantencomputern [13].

Im Mittelpunkt dieser Arbeit steht die Anwendung des Quanten-Monte-Carlo-(QMC)-Verfahrens zur Analyse des Magnetismus von Spinsystemen in verschiedenen Dimensionen mit homogenen, langreichweitigen und frustrierten Austauschkopplungen. Zur Einführung in diese Thematik werden zuerst die Modelle der Spinsysteme erläutert. Danach werden die für diese Arbeit relevanten Phasen und Anregungen dieser Modelle diskutiert. Außerdem werden die Vor- und Nachteile numerischer Methoden zur Analyse dieser Modelle beschrieben. Zuletzt wird noch die Gliederung der Arbeit vorgestellt.

Modell

Spinsysteme sind die Konsequenz stark korrelierter Elektronensysteme, die durch das Hubbard-Modell mit halber Füllung im Grenzfall verschwindender Doppelbesetzung beschrieben werden können [14]. Dieser Fall ist gegeben, wenn die Stärke der Coloumb-Abstoßung U groß ist gegenüber dem Hüpfintegral t , $U \gg t$. Nach der Entwicklung des

Hubbard-Modells in t/U lässt sich ein generischer Spin-Hamiltonoperator als Potenzreihe formulieren

$$\mathcal{H} = \sum_{ij} \Gamma_{ij}^{\alpha\beta} S_i^\alpha S_j^\beta + \sum_{ijk} \Gamma_{ijk}^{\alpha\beta\gamma} S_i^\alpha S_j^\beta S_k^\gamma + \sum_{ijkl} \Gamma_{ijkl}^{\alpha\beta\gamma\delta} S_i^\alpha S_j^\beta S_k^\gamma S_l^\delta + \dots, \quad (1.1)$$

wobei $\alpha, \beta, \gamma, \delta = \{x, y, z\}$ die Komponenten des Spinoperators $\mathbf{S} = (S^x, S^y, S^z)$ mit der Spinquantenzahl S sind. Die Wechselwirkung Γ der Spins findet entsprechend des Gittertyps zwischen den Plätzen i, j, k, l statt und ist in wachsender Ordnung $\mathcal{O}(t/U)$ sortiert. In dieser Arbeit soll eine Vereinfachung dieses allgemeinen Hamiltonoperators untersucht werden. Dazu wird einerseits der bilineare Term, der auch im Heisenberg-Modell auftaucht [15], und andererseits der quadrilineare Term berücksichtigt. Bezüglich des trilinearen Terms wird angenommen, dass auf den untersuchten Gittern aus Symmetriegründen der Austausch vom Dzyaloshinskii-Moriya-Typ [16, 17] keine Rolle spielt. Der quadrilineare Term, auch Ringaustausch genannt, ist in metallorganischen Verbindungen und ^3He relevant [18–22] und lässt sich in ultrakalten atomaren Gasen realisieren [23]. Daraus folgt zusätzlich mit einem Magnetfeld h_i gekoppelt an die S^z -Komponente des Spins an Platz i der Hamiltonoperator

$$\begin{aligned} \mathcal{H} = & - \sum_{ij} J_{ij} \left[\frac{1}{2} (S_i^+ S_j^- + h.c.) + \Delta_{ij} S_i^z S_j^z \right] \\ & - \sum_{ijkl} K_{ijkl} \underbrace{(S_i^+ S_j^- S_k^+ S_l^- + h.c.)}_{P_{ijkl}} + \sum_i h_i S_i^z \end{aligned} \quad (1.2)$$

mit dem Plaquette-Operator P_{ijkl} , der Anisotropie Δ , dem Heisenberg-Austausch J_{ij} und dem Ringaustausch K_{ijkl} . Die Auf- und Absteigeoperatoren sind durch $S^\pm = S^x \pm iS^y$ definiert. Für $S = 1/2$ führt die Anwendung des Ringaustauschs nur auf einem alternierenden Zustand $|\downarrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle$ zu einem endlichen Beitrag $P_{ijkl} |\downarrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle = |\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow\rangle$ und entspricht einer zyklischen Vertauschung. Der Magnetismus dieser Modelle ist abhängig von den Parametern J_{ij} , Δ_{ij} , K_{ijkl} , h_i , der Spinquantenzahl S und dem Gittertyp.

In dieser Arbeit werden Spinsysteme auf unterschiedlichen Gittertypen untersucht. Diese sind in Abb. 1.1 dargestellt. Dort sind die Gittertypen anhand der Dimension klassifiziert. Der Würfel in Abb. 1.1(a) ist ein kleines, endliches, nulldimensionales System und wird in Kapitel 3 untersucht. Eine eindimensionale Spinkette ist in Abb. 1.1(b) dargestellt und wird mit alternierenden Austauschwechselwirkungen für $S = 1/2$ und anisotroper Austauschwechselwirkung für $S = 1$ in Kapitel 4 betrachtet. In Kapitel 5 werden zweidimensionale Systeme mit Ringaustausch auf den Plaquetten $ijkl$ auf dem Quadratgitter, siehe Abb. 1.1(c), auf dem Dreiecksgitter, siehe Abb. 1.1(d), und auf dem Kagome-Gitter, siehe Abb. 1.1(e), untersucht.

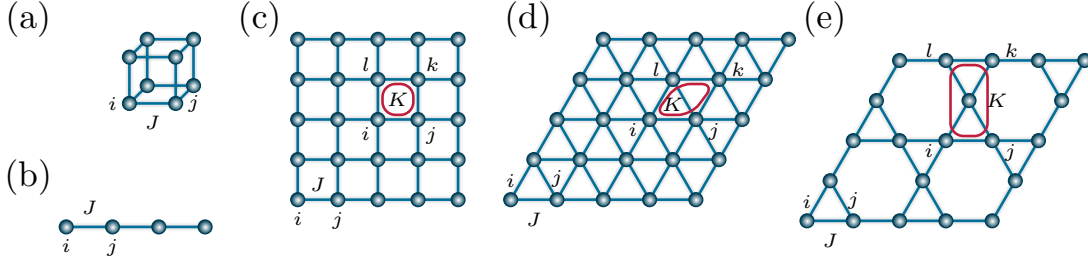


Abbildung 1.1.: Die untersuchten Gittertypen sind (a) nulldimensionale Nanoteilchen, (b) die eindimensionale Kette und unter den zweidimensionalen Gittern (c) das Quadratgitter, (d) das Dreiecksgitter und (e) das Kagome-Gitter. Die Spins sind auf den Plätzen (Punkte) durch die Bonds bzw. die nächste-Nachbar-Wechselwirkung J_{ij} (Linien) miteinander verbunden. Auf den zweidimensionalen Gittern (c)-(e) wirkt ein Ringaustausch der Stärke K auf die Spins auf der Plaqueette $ijkl$.

Im Folgenden sollen die Parameter J_{ij} und Δ_{ij} im bilinearen Term diskutiert werden. Für den Fall $J_{ij} < 0$ wird die Energie durch eine antiparallele Ausrichtung minimiert und man spricht von einer antiferromagnetischen Kopplung. Im umgekehrten Fall $J_{ij} > 0$ ist die Kopplung ferromagnetisch und eine parallele Ausrichtung wird bevorzugt. Die Anisotropie verändert die Kopplung der S^z -Komponenten und es gibt mehrere interessante Grenzfälle, die für diese Arbeit relevant sind. Die erste Summe wird mit $J_{ij} = 1$ und $\Delta_{ij} = 1$ zum isotropen Heisenberg- bzw. XXX-Modell [15] und für $\Delta_{ij} \neq 1$ zum anisotropen Heisenberg- bzw. XXZ-Modell. Letztere Wahl kann weiter unterteilt werden, denn für $\Delta_{ij} = 0$ spricht man vom XY-Modell [24, 25] und für $\Delta_{ij}/J_{ij} \rightarrow \infty$ gelangt man zum Ising-Modell [26].

Die drei Komponenten des Spinoperators erfüllen die nicht trivialen Vertauschungsrelationen $[S^k, S^l] = i\hbar\epsilon_{klm}S^m$ mit $k, l, m \in \{x, y, z\}$, deshalb gibt es im Allgemeinen Quantenfluktuationen. Im Grenzfall einer hohen Koordinationszahl und einer großen Spinquantenzahl $S \rightarrow \infty$ spielen die Quantenfluktuationen keine große Rolle, solche Systeme werden als klassische Magnete verstanden. Umgekehrt spielen die Quantenfluktuationen eine große Rolle bei einer kleinen Spinquantenzahl und in niedrigen Dimensionen, diese werden als Quantenmagnete bezeichnet.

Phasen und Anregungen

Ziel dieser Arbeit ist es, die Phasen und Anregungen von Quantenmagneten zu beschreiben. Dazu gibt es in diesem Abschnitt eine Erläuterung der relevanten Begriffe. Phasen beschreiben ein physikalisches System, das eine Symmetrie \mathcal{S} hat, also $[\mathcal{H}, \mathcal{S}] = 0$, die jedoch in der thermodynamischen Gesamtheit oder im Grundzustand gebrochen ist, d. h. die Dichtematrix ρ vertauscht nicht mit \mathcal{H} , also $[\mathcal{H}, \rho] \neq 0$. Diese werden Symmetrie-gebrochene Zustände genannt. Damit können Mittel- bzw. Erwartungswerte

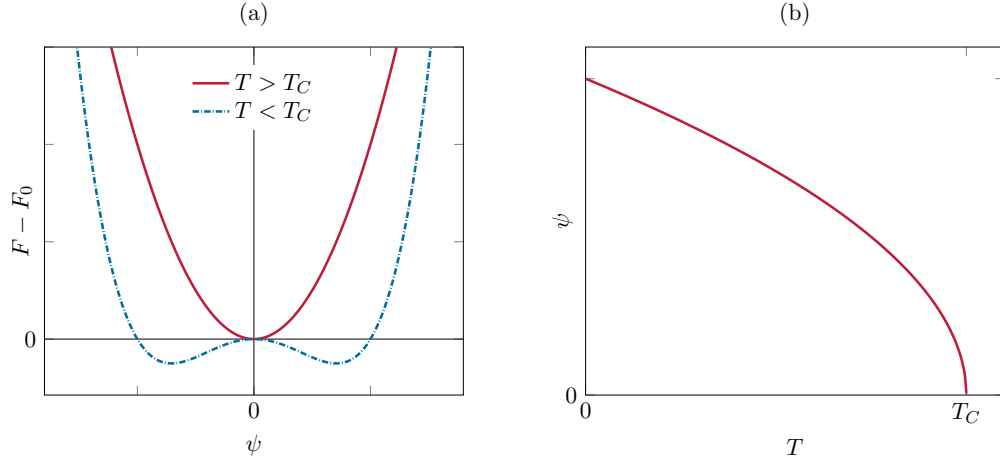


Abbildung 1.2.: Beschreibung des thermischen Phasenübergangs nach der Ginzburg-Landau-Theorie. (a) Die freie Energie $F - F_0$ aus Gl. (1.3) als Funktion des Ordnungsparameters ψ . (b) Der Ordnungsparameter ψ ist für $T < T_C$ endlich und verschwindet für $T > T_C$.

von Observablen, die unter \mathcal{S} nicht invariant sind, endliche Werte annehmen, sogenannte Ordnungsparameter. \mathcal{S} kann dabei sowohl kontinuierliche als auch diskrete Gruppen beschreiben. Zum Beispiel ist beim Ferromagneten der Ordnungsparameter die Magnetisierung $M = \sum_i \langle S_i^z \rangle$ und es wird die Spinrotationssymmetrie gebrochen. Eine akzeptierte und verstandene Beschreibung von thermischen Phasenübergängen zweiter Ordnung ist die Ginzburg-Landau-Theorie [27, 28]. Diese baut auf der Entwicklung der freien Energie F als Funktion eines Ordnungsparameters ψ in der Nähe eines Phasenübergangs auf

$$F(T, g, \psi) = F_0 + a(T, g) \psi^2 + b(T, g) \psi^4. \quad (1.3)$$

Die Parameter a und b hängen von der Temperatur T und den Austauschkopplungen g ab. Mithilfe der freien Energie lässt sich der thermische Phasenübergang bei festem g mit $F(T, g = \text{const}, \psi)$ beschreiben. Analog ist die Versuchung groß, eine Gültigkeit von Gl. (1.3) auch für $T = 0$, also für die Abhängigkeit der Grundzustandsenergie von g , anzunehmen. Dies würde es ermöglichen, Phasenübergänge bei $T = 0$, also sogenannte Quantenphasenübergänge, einfach durch Vertauschung von T mit g zu beschreiben. Diese Beschreibung ist nicht korrekt. Der wesentliche Unterschied zwischen einem thermischen und einem Quantenphasenübergang besteht darin, dass bei letzterem der Ordnungsparameter durch den Potentialberg in der Mitte der gestrichelten Linien in Abb. 1.2(a) quantenmechanisch tunneln kann, d. h. Quantenfluktuationen durchführen kann. Um dies formal richtig zu beschreiben muss Gl. (1.3) um die Zeit als zusätzliche

Koordinate im Sinne eines Pfadintegrals erweitert werden. Für den Zweck einer Einleitung soll dieser wesentliche Unterschied aus Gründen der Einfachheit jedoch vernachlässigt werden. Der Phasenübergang findet in dieser Vereinfachung also am kritischen Wert T_C bzw. g_C statt. Der Ordnungsparameter $\psi \neq 0$ ist unterhalb des kritischen Wertes endlich und oberhalb des kritischen Wertes verschwindet der Ordnungsparameter $\psi = 0$. Dies entspricht einer geordneten Phase unterhalb von T_C bzw. g_C und einer ungeordneten Phase oberhalb des kritischen Wertes. Der typische Verlauf der freien Energie aus Gl. (1.3) ist in Abbildung 1.2(a) und des Ordnungsparameters in Abbildung 1.2(b) für einen thermischen Phasenübergang gezeigt. Die freie Energie für T besitzt unterhalb der kritischen Temperatur T_C zwei Minima und oberhalb nur ein Minimum. Der Ordnungsparameter nimmt den Wert ein, der die freie Energie minimiert. Um den Phasenübergang zeigen physikalische Größen typischerweise ein Potenzverhalten. Dazu gehört beispielsweise die Korrelationsfunktion $C(i, j)$, wobei für $T > T_C$ gilt $C(i, j) = \langle S_i^\alpha S_j^\beta \rangle - \langle S_i^\alpha \rangle \langle S_j^\beta \rangle \propto e^{-|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|/\xi}$, deren Korrelationslänge $\xi \sim |T - T_C|^{-\nu}$ unterhalb T_C oder jenseits von g_C divergiert.

Da die Ginzburg-Landau-Theorie im thermodynamischen Limes für gebrochene kontinuierliche Symmetrien formuliert ist, ist die Beschreibung auf ein unendlich großes System $N \rightarrow \infty$ beschränkt. Damit kann beispielsweise die langreichweitige Ordnung in einem antiferromagnetischen Spin-1/2-Modell im thermodynamischen Limes beschrieben werden. Eine langreichweitige Ordnung auf einem dreidimensionalen, bipartiten Gitter mit antiferromagnetischen, isotropen Heisenberg-Wechselwirkungen der benachbarten Spin-1/2 ist in Abb. 1.3(a) dargestellt [29, 30]. Der dargestellte Zustand, Spin- \uparrow auf einem Untergitter A und Spin- \downarrow auf dem anderen Untergitter B ist der klassische Grundzustand und wird als Néel-Zustand bezeichnet, wobei die Untergittermagnetisierung der Ordnungsparameter ist. Für solche Systeme ist eine Divergenz der spezifischen Wärme bei der kritischen Temperatur T_C zu erwarten.

In dieser Arbeit sind hauptsächlich Modelle von Interesse, die mehr als die Ginzburg-Landau-Theorie zu ihrer Beschreibung benötigen. Dazu werden endliche Systeme außerhalb des thermodynamischen Limes, niedrigdimensionale Systeme und topologische Ordnungen beschrieben. In endlichen Systemen gibt es keine spontane Symmetriebrechung [31, 32] und es existiert in der spezifischen Wärme um T_C nur ein Peak und keine Divergenz. Die Diskussion von endlichen Systemen wird in Kapitel 3 fortgeführt.

Selbst im thermodynamischen Limes gibt es Einschränkungen durch das Mermin-Wagner-Theorem in niedrigdimensionalen Systemen $d \leq 2$. Das Mermin-Wagner-Theorem besagt für Systeme mit hinreichend kurzreichweitigen Austauschwechselwirkungen, dass es in einer und zwei Dimensionen bei endlichen Temperaturen keine spontane Symmetriebrechung der kontinuierlichen Symmetrie geben kann [33]. Da also bei endlichen Temperaturen in einer Dimension kein Symmetriebruch vorliegt und somit keine langreichweitige Ordnung möglich ist, sind antiferromagnetische Spinketten interessant, die in Kapitel 4 näher untersucht werden. Hierbei ist eine Unterscheidung zwischen ganzzahligen $S = 1, 2, \dots$ und halbzahligen $S = 1/2, 3/2, \dots$ Spinketten relevant, da die magnetischen Eigenschaften sich stark unterscheiden [25]. Für halbzahlige Spinketten

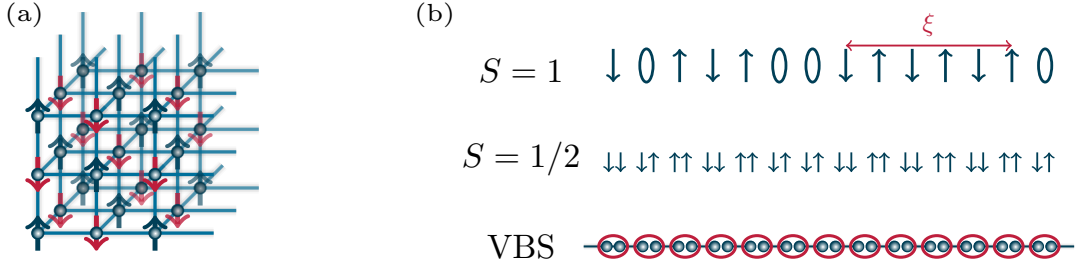


Abbildung 1.3.: (a) Der quasi-klassische Néel-Zustand auf einem unendlich großen, bipartiten Würfel im klassischen Limes. Die Spin-1/2 (Pfeile) sind auf den Plätzen (Punkte) durch die Bonds bzw. die nächste-Nachbar-Wechselwirkung (Linien) miteinander verbunden. (b) Der Grundzustand der Haldane-Kette ist durch den String-Ordnungsparameter charakterisiert und besitzt eine kurzreichweitige Korrelation $\xi \simeq 6$. Die Eigenschaften dieses Modells können durch eine Darstellung der Spin-1-Kette mit Spin-1/2 und des VBS-Zustands im AKLT-Modell verstanden werden. Die roten Ellipsen stellen dabei eine Projektion der Spin-1/2 zu einem Spin-1 dar, wobei diese durch $|+\rangle \langle\uparrow\uparrow| + |0\rangle \langle\uparrow\downarrow| + \langle\downarrow\uparrow|/\sqrt{2} + |-\rangle \langle\downarrow\downarrow|$ repräsentiert sind. $|+\rangle$, $|0\rangle$ und $|-\rangle$ sind dabei die Spin-1-Eigenzustände in der S^z -Basis. Die Valenzbonds (Linien) sind durch $(|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle)/\sqrt{2}$ charakterisiert.

kann in großen Bereichen der Spinkette eine lokale Ordnung existieren, die dem quasi-klassischen Néel-Zustand entspricht. Aufgrund des Mermin-Wagner-Theorems unterdrücken die thermischen Fluktuationen in einer Dimension die Tendenz zur Ordnung und es gibt bei endlichen Temperaturen keine langreichweitige Ordnung. Für Spinketten mit $S = 1$ und allgemein ganzzahliger Spinquantenzahl wurde gezeigt, dass diese eine Spinlücke aufweisen [34]. Zur exakten Beschreibung des Grundzustands der antiferromagnetischen Spin-1-Kette, auch Haldane-Kette genannt, kann das AKLT-Modell verwendet werden [35]. In Abb. 1.3(b) ist dazu der Grundzustand der Haldane-Kette dargestellt. Der Grundzustand der Spin-1-Kette kann durch die Charakterisierung mittels eines String-Ordnungsparameters verstanden werden [36]. Hierbei folgt einem Spin- \uparrow ($S^z = 1$) ein Spin- \downarrow ($S^z = -1$) oder mehrere Nullen ($S^z = 0$) bzw. einem Spin- \downarrow ein Spin- \uparrow oder mehrere Nullen. Die antiferromagnetischen Korrelationen sind kurzreichweitig $\xi \simeq 6$ [37]. Der String-Ordnungsparameter kann durch die Darstellung der Spin-1 als Spin-1/2 verstanden werden. Auf jedem Platz sind zwei Spins-1/2 zu einem Spin-1 gebunden. Zwischen den benachbarten Plätzen bilden diese einen Singulett-Zustand, auch Valenzbond genannt. Dieser Valenzbond-Festkörper (VBS)¹ zeigt die ungebrochene Translationssymmetrie des Grundzustands.

In der Ginzburg-Landau-Theorie wird eine Ordnung durch einen lokalen Ordnungsparameter beschrieben. Topologische Ordnungen hingegen können nicht durch einen lokalen Ordnungsparameter beschrieben werden [38, 39] und können deshalb nicht durch die

¹engl. *valence bond solid*

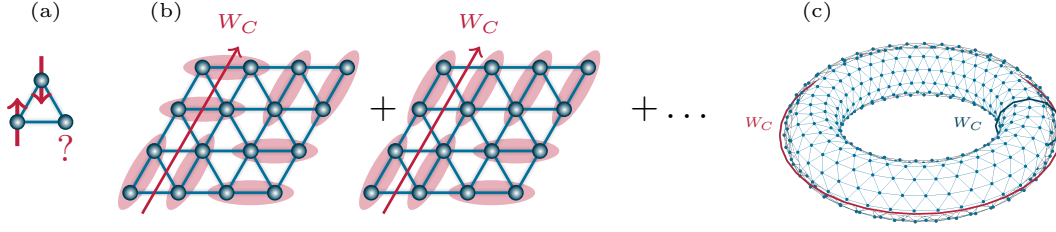


Abbildung 1.4.: (a) Die isotrope antiferromagnetische Heisenberg-Austauschwechselwirkung ist auf dem Dreiecksgitter frustriert. (b) Auf dem Dreiecksgitter lässt sich der Grundzustand durch eine Superposition aller möglichen Dimerkonfigurationen beschreiben. Der Dimer wird durch Valenzbonds $(|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle)/\sqrt{2}$ beschrieben. Der Wilson-Loop entlang der periodischen Randbedingungen erhält die Parität, wenn ein Dimerpaar gedreht wird. (c) Das Dreiecksgitter mit periodischen Randbedingungen kann um einen Torus gewickelt werden. Dort gibt es zwei topologisch unterscheidbare Wilson-Loops, die die \mathbb{Z}_2 topologischen Ordnung beschreiben.

Ginzburg-Landau-Theorie erklärt werden. Ein Beispiel für ein System mit einer topologischen Ordnung wird im Folgenden beschrieben. Es wird dazu das Dreiecksgitter mit einer isotropen antiferromagnetischen Heisenberg-Austauschwechselwirkung betrachtet. Auf dem Dreiecksgitter können diese konkurrierenden Wechselwirkungen klassisch nicht gleichzeitig optimal befriedigt werden, vgl. Abb. 1.4(a). Dies wird Frustration genannt [40, 41]. Das Auftreten der Frustration ist hier von der Gittergeometrie und dem Vorzeichen der Austauschwechselwirkungen abhängig. In frustrierten Magneten ist der Grundzustand oft hochgradig entartet und die Fluktuationen groß. Eine Möglichkeit zur approximativen Minimierung der Energie ist eine Superposition von Dimerkonfigurationen auf dem Gitter [42]. Die Bildung von Singulett-Zuständen von benachbarten Spins, vgl. Abb. 1.4(b), ist kein Eigenzustand des Systems. Da alle Dimerkonfigurationen das gleiche Gewicht haben, kann ein Paar von Dimeren gedreht werden und eine Superposition davon den sogenannten Resonanz-Valenzbond-Zustand (RVB) bilden [43–46]. Diese Phase hat keine magnetische Ordnung und wird Quantenspinflüssigkeit (QSL)² genannt. Diese wurde erstmalig von P. W. Anderson vorgeschlagen [42]. Für eine ausführliche Beschreibung sind eine Vielzahl an Review-Artikel zu empfehlen [47–50]. Das Drehen der Dimerpaare erhält die Parität der Wilson-Loops, vgl. Abb. 1.4(b), d. h. die Anzahl der Dimere, die modulo 2 die eingezeichnete Linie schneiden. Dies wird deshalb als Ordnungsparameter verstanden. Der Hauptpunkt ist dabei, dass zur Bestimmung dieser Parität immer das gesamte System benötigt wird, d. h. der Ordnungsparameter ist nicht lokal. Aus diesem Grund versagt die Ginzburg-Landau-Theorie. Ein Dreiecksgitter mit periodischen Randbedingungen kann auf einen Torus gewickelt werden, wie in Abb. 1.4(c) dargestellt ist. Da es auf dem Torus nur zwei topologisch unterscheidbare Wilson-Loops gibt, spricht man von einer \mathbb{Z}_2 topologischen Ordnung [51, 52]. Der Ringaustausch im

²engl. *quantum spin liquid*

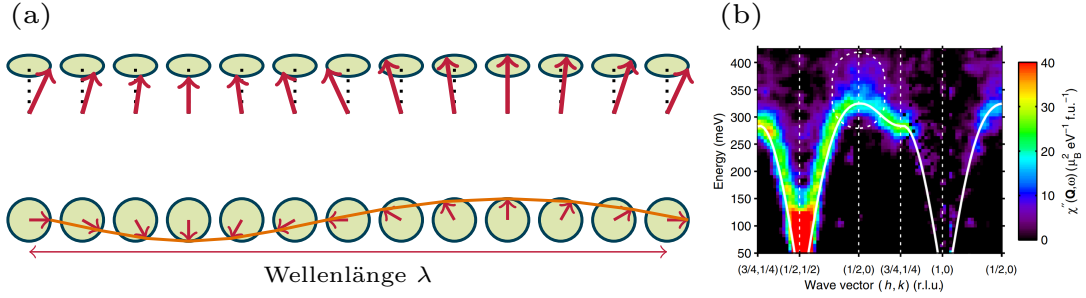


Abbildung 1.5.: (a) Klassische ferromagnetische Spinwellenanregung in der Seitenansicht und Draufsicht. Der Wellenvektor $q = 2\pi/\lambda$ resultiert aus der Wellenlänge λ der präzedierenden Spins. (b) Die Ergebnisse der inelastischen Neutronenstreuung des quasi-zweidimensionalen Antiferromagneten La_2CuO_4 kann dabei gut durch ein Magnon (weiße Linie) beschrieben werden [53].

©Urheberrechtlich geschützte Abbildung mit Genehmigung durch die American Physical Society angepasst von Ref. [53].

Hamiltonoperator in Gl. (1.2) ist frustriert und führt auf dem Kagome-Gitter zu einer ähnlichen Physik, die resultierende Quantenspinflüssigkeitsphase wird in Abschnitt 5.1 diskutiert.

Nach diesen Bemerkungen zu den für diese Arbeit relevanten Phasen werden im Folgenden die drei elementaren Anregungen beschrieben, die in dieser Arbeit von Interesse sind. Dazu gehören das Magnon, die Anregung der Spin-1-Kette und das Spinon. Erstens werden die Spinwellenanregungen der antiferromagnetischen bzw. ferromagnetischen Ordnung, das **Magnon**, beschrieben. Das Goldstone-Theorem besagt, dass die Anregung eines System mit spontaner Brechung einer kontinuierlichen Symmetrie lückenlose Goldstone-Moden sind [54, 55]. In Spinsystemen werden diese Anregungen Spinwellen oder Magnon-Quasiteilchen genannt [56]. Eine beispielhafte klassische Spinwellenanregung eines Ferromagneten ist in Abb. 1.5(a) dargestellt. Die Spinquantenzahl des Magnons ist $S = 1$. Die Dispersionsrelation ist für kleine Wellenvektoren q bei Ferromagneten quadratisch $\hbar\omega \propto q^2$ und bei Antiferromagneten linear $\hbar\omega \propto q$ [57]. Die Magnonen lassen sich gut durch eine Näherung mit der (linearen) Spinwellentheorie beschreiben [58, 59]. Experimentell konnte das Magnon in Messungen der inelastischen Neutronenstreuung beispielsweise für das quasi-zweidimensionale antiferromagnetische Spin-1/2-System La_2CuO_4 beobachtet werden [53]. In diesem realen Material gibt es kleine Kopplungen zwischen den atomaren Lagen, deshalb widerspricht die langreichweitige Ordnung nicht dem Mermin-Wagner-Theorem. In Abb. 1.5(b) ist dazu das resultierende Spektrum aus der inelastischen Neutronenstreuung für La_2CuO_4 gezeigt. Die niederenergetischen Anregungen können gut durch die Dispersion eines Magnons beschrieben werden.

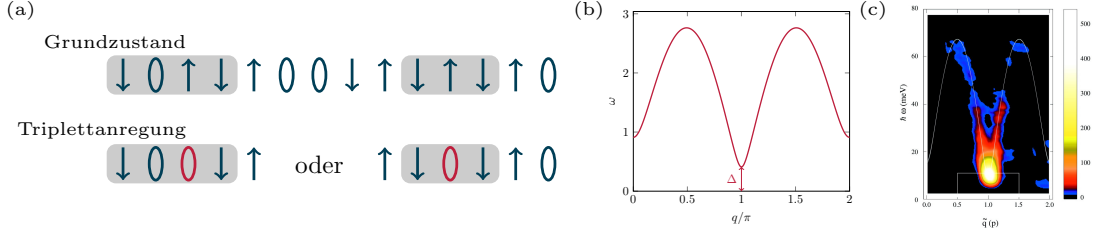


Abbildung 1.6.: (a) Grundzustand und eine Tripletanregung in der Haldane-Kette. (b) Die experimentellen Ergebnisse der inelastischen Neutronenstreuung für Y_2BaNiO_5 zeigen eine Spinlücke Δ im Anregungsspektrum [61]

©Urheberrechtlich geschützte Abbildung mit Genehmigung durch AAAS angepasst von Ref. [61].

Im Folgenden wird die Anregung der Haldane-Kette beschrieben. Die niederenergetische Anregung aus dem Grundzustand heraus ist eine **Tripletanregung**, vgl. Abb. 1.6(a). Dabei wird der beschriebene Grundzustand von alternierenden Spin- \uparrow und Spin- \downarrow mit dazwischenliegenden Nullen durch eine Erzeugung eines Triplets aufgebrochen. Der angeregte Zustand verändert somit den String-Ordnungsparameter. Die dazugehörige Dispersion hat eine Spinlücke Δ beim Wellenvektor $q = \pi$ [60] und ist in Abb. 1.6(b) dargestellt. Hierbei werden Prozesse höherer Ordnung, wie das Zwei- bzw. Drei-Magnon-Kontinuum, nicht weiter untersucht [60]. Die theoretischen Vorhersagen bezüglich einer endlichen Spinlücke konnten experimentell mit der inelastischen Neutronenstreuung für das Haldane-Ketten-Material Y_2BaNiO_5 bestätigt werden [61]. Die experimentellen Ergebnisse sind in Abb. 1.6(c) dargestellt und zeigen einen qualitativ ähnlichen Verlauf wie die zuvor dargestellte Dispersion.

Ales letztes werden eine Form der elementaren Anregungen der Quantenspinflüssigkeitsphase, die **Spinonen**, beschrieben. Die Anregungen der QSL sind exotisch, da die Spinonen neutrale Teilchen mit einer Spinquantenzahl $S = 1/2$ sind. Spinonen sind Spins, die nicht in einem Valenzbond gebunden sind, vgl. Abb. 1.7(a), und sich frei durch das Gitter bewegen können. Das theoretische Konzept des Spinons existiert auch in einer Dimension und ist dort experimentell nachgewiesen, so z. B. in der antiferromagnetischen Spin-1/2-Heisenberg-Kette $CuSO_4 \cdot 5D_2O$ [62], vgl. Abb. 1.7(b). Die Ergebnisse der inelastischen Neutronenstreuung konnten dabei durch theoretische Berechnungen des Zwei- und Vier-Spinon-Kontinuums erklärt werden. Die Realisierung von QSL-Phasen in Materialien ist eine aktuelle Forschungsaufgabe, die viel Aufmerksamkeit bekommt [63]. Eine Schwierigkeit ist dabei die direkte Charakterisierung der QSL-Phase aufgrund des fehlenden lokalen Ordnungsparameters, da die topologische Ordnung im Experiment nicht direkt gemessen werden kann. In zwei Dimensionen konnte bis jetzt noch kein zweifelsfreier Nachweis von Spinonen gelingen. Dabei existieren eine Vielzahl an Materialkandidaten auf dem Dreiecksgitter in $YbMgGaO_4$ [64], im organischen Mott-Isolator $\kappa-(ET)_2-Cu_2(CN)_3$ [65, 66] und in antiferromagnetischen Kagome-Gittern wie Herbertsmithit $ZnCu_3(OH)_6Cl_2$ [67].

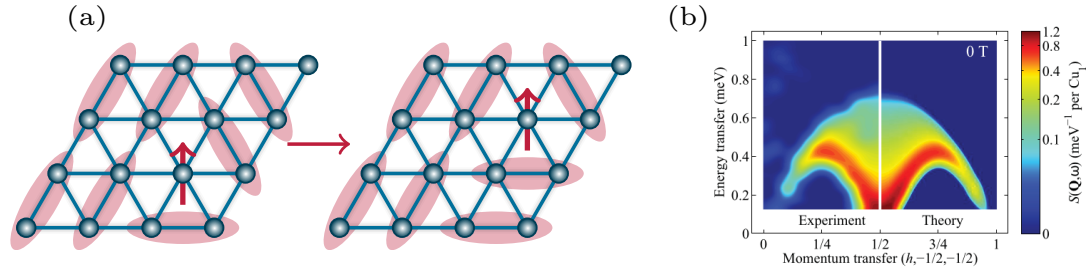


Abbildung 1.7.: Spinon-Anregung der Quantenspinflüssigkeitsphase. (a) Ein Spinon ist ein freies Spin-1/2, welches an keinen Valenzbond gebunden ist. (b) Der Vergleich der Intensitäten aus der inelastischen Neutronenstreuung mit theoretischen Ergebnissen. Für die antiferromagnetische Spin-1/2-Heisenberg-Kette $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{D}_2\text{O}$ mit Zwei- und Vier-Spinon-Anregungen von [62].

©Urheberrechtlich geschützte Abbildung mit Genehmigung durch Springer Nature angepasst von Ref. [62].

Methoden

Die mit dem Hamiltonoperator in Gl. (1.2) beschriebenen Modelle können selten exakt gelöst werden. Analytische Methoden können nur unter Einschränkungen zur exakten Lösung von Quantenvielteilchensystemen beitragen, z. B. kann der Bethe-Ansatz für integrable Systeme in einer Dimension verwendet werden [68]. Daneben existieren numerische Methoden, um sich dem hochdimensionalen Hilbertraum anzunähern. Dabei müssen Einschränkungen in Kauf genommen werden, mit welchen sich die numerischen Methoden in drei Gruppen einteilen lassen.

Erstens können kleine Systeme und Spinquantenzahlen untersucht werden, z. B. bieten sich dafür die **exakte Diagonalisierung** (ED) und die Lanczos-Methode [69] an. Exakte numerische Diagonalisierungstechniken versuchen Eigenenergien und Eigenzustände von Hamiltonoperatoren explizit zu bestimmen. Wenn man nur an dem niederenergetischen Spektrum interessiert ist, kann dazu auch die Lanczos-Methode verwendet werden [69]. Der Diagonalisierungsprozess befasst sich mit einem Hilbertraum, der exponentiell mit der Anzahl der Spins wächst. Daher ist die Methode auf kleine Systemgrößen beschränkt. Unter Berücksichtigung der Symmetrien des Systems lässt sich der Hilbertraum effektiv verkleinern, um Berechnungen von größeren Systemgrößen zu ermöglichen. Anregungsspektren können mit einer beliebigen Frequenzauflösung berechnet werden [70], aber der erhöhte Rechenaufwand senkt die zugängliche Systemgröße im Vergleich zu reinen Untersuchungen des Grundzustands. Daneben bietet sich auch die dynamische Quanten-Typikalität (DQT) [71–81] zur Betrachtung kleiner Systeme an. Vereinfacht beschrieben nutzt diese Methode aus, dass Erwartungswerte bezüglich eines zufälligen reinen Quantenzustands mit hoher Genauigkeit Ensemblemittelwerte approximieren können.

Zweitens ermöglichen Tensornetzwerke eine effiziente Beschreibung von schwach verschränkten Zuständen. Dazu gehört die **Dichtematrix-Renormalisierungsgruppen-Methode** (DMRG) [37, 82–84], die ein moderner Algorithmus zur Behandlung eindimensionaler Systeme ist. Sie ermöglicht die kontrollierte Berechnung von Systemeigenschaften, einschließlich der Spindynamik. Die DMRG ist von Natur aus in einer Dimension formuliert. Zweidimensionale Systeme mit periodischen Randbedingungen können untersucht werden, indem z. B. eine Spinkette um einen Zylinder gewickelt wird. Bei diesem Ansatz werden die Wechselwirkungen zwischen den nächsten Nachbarn zu Wechselwirkungen mit längerer Reichweite, was sich negativ auf die Leistung auswirkt und den zugänglichen Zylinderumfang begrenzt [85]. Tensornetzwerkmethoden wie der PEPS-Algorithmus³ [86], der die Prinzipien der DMRG in zwei Dimensionen transformiert, sind immer noch ein aktives Forschungsgebiet.

Als letzte Methode kann der Zustandsraum durch einen Metropolis-Algorithmus reduziert werden, z. B. mit **Quanten-Monte-Carlo-Methoden** (QMC). Monte-Carlo-Methoden verwenden Pseudozufallszahlengeneratoren, um verschiedene Zustände zu erfassen, die im vorliegenden thermodynamischen Ensemble auftreten. In dieser Arbeit liegt der Fokus auf der stochastischen Reihenentwicklung (SSE)⁴, die ein Algorithmus aus der Klasse der QMC-Verfahren für Spin- und Bosonengittermodelle ist [87, 88]. Dabei wird der Zustandsraum zerlegt, was eine Zufallsstichprobe in einem $(d+1)$ -dimensionalen Raum ermöglicht, wobei d die Dimension des Gitters ist. Dabei ist die zusätzliche Dimension diskret und kann auf einer imaginären Zeitachse abgebildet werden [89]. Dies ermöglicht es, Spin-Spin-Korrelationsfunktionen in der imaginären Zeit zu extrahieren, die dann durch den Prozess der analytischen Fortsetzung in reale Frequenzspektralfunktionen transformiert werden können. Die zugängliche Gittergröße hängt stark vom vorliegenden Modellsystem ab und die benötigten Rechenressourcen skalieren nicht exponentiell mit dieser Größe. Daher sind viele ein-, zwei- und dreidimensionale Systeme von angemessener Größe zugänglich. Ein Nachteil ist die begrenzte Qualität der analytischen Fortsetzung. Außerdem hat der Algorithmus in nicht-bipartiten oder frustrierten Systemen ein Vorzeichenproblem⁵. Dadurch wird die Statistik bei niedrigen Temperaturen schlecht und die Untersuchung solcher Systeme ist mit der QMC nicht praktikabel. Es existieren Ansätze, um entweder das Vorzeichen als Observable zu messen oder beispielsweise Meron-Cluster-Algorithmen zu benutzen [90]. Das Vorzeichenproblem spielt bei den untersuchten Modellen in dieser Arbeit keine Rolle und wird deshalb nicht weiter diskutiert.

³engl. *projected entangled pair states*

⁴engl. *stochastic series expansion*

⁵engl. *sign problem*

Gliederung

In dieser Dissertation werden die Thermodynamik und Anregungen in verschiedenen Phasen einer speziellen Auswahl von Quantenspinsystemen untersucht. Zur Untersuchung wird hauptsächlich die **Quanten-Monte-Carlo-Methode** (QMC) genutzt, die in Kapitel 2 beschrieben wird. Dazu wird zuerst die klassische Monte-Carlo-Methode und die stochastische Reihenentwicklung erläutert. Abhängig vom untersuchten Modell wird die stochastische Reihenentwicklung für Bonds oder Plaquetten definiert. Danach wird die Messung von statischen und dynamischen Größen inklusive der resultierenden Fehler gezeigt. Aufgrund der Messung der dynamischen Strukturfaktoren in der imaginären Zeit, wird die analytische Fortsetzung auf die reale Frequenzachse mithilfe der Maximum-Entropie-Methode erklärt.

Die damit untersuchten Modelle lassen sich in drei Kategorien aufteilen.

Erstens wird in Kapitel 3 die Thermodynamik des **antiferromagnetischen Spin-1/2-Würfels** in Abhängigkeit der endlichen Systemgröße untersucht. Der Hamiltonoperator in Gl. (1.2) wird dabei ohne Ringaustausch $K = 0$ betrachtet. Dabei wird der Übergang des Quanten- zu klassischem Verhalten untersucht. Für kleine Systeme ist das Quantenverhalten relevant und in der Magnetisierung treten Stufen auf. Für große Systeme, also im thermodynamischen Limes, verschwinden die Charakteristiken des Quantenverhaltens und das Modell zeigt klassisches Verhalten. Die QMC-Ergebnisse der thermodynamischen Größen für verschiedene Temperaturen, Magnetfelder und Kantenlängen lassen sich außerdem durch die lineare Spinwellentheorie auf endlichen Gittern beschreiben.

Zweitens wird in Kapitel 4 die Spindynamik von Heisenberg-Ketten untersucht. Der Hamiltonoperator in Gl. (1.2) wird auch dort ohne Ringaustausch $K = 0$ betrachtet. Zuerst wird in Abschnitt 4.1 die **alternierende ferro- und antiferromagnetische Spin-1/2-Heisenberg-Kette** untersucht. Aufgrund der Wahl der Austauschkopplungen geht das Modell von der dimerisierten zur Haldane-Kette über. Mithilfe der Störungstheorie und QMC werden die Spinlücke und der transversale dynamische Strukturfaktor für verschiedene Temperaturen und Austauschkopplungen verglichen. Das Spektrum skaliert dabei zwischen einem Triplonen- und einem Haldane-Ketten-Spektrum.

Danach wird in Abschnitt 4.2 die **anisotrope antiferromagnetische Spin-1-Heisenberg-Kette** diskutiert, welche im Grenzfall die Eigenschaften einer Haldane-Kette hat und somit mit den Ergebnissen aus dem vorangegangenen Abschnitt verglichen werden kann. Die Spindynamik bei endlichen Temperaturen wird mithilfe der QMC berechnet und mit Ergebnissen der DQT verglichen.

Drittens werden in Kapitel 5 planare XY-Ferromagnete mit Ringaustausch untersucht. Der Hamiltonoperator in Gl. (1.2) ist durch eine verschwindende Anisotropie Δ und ohne Magnetfeld h definiert. Zuerst wird in Abschnitt 5.1 der planare **XY-Ferromagnet auf dem trimerisierten Kagome-Gitter** mit Ringaustausch gezeigt. Mithilfe von QMC-Ergebnissen wird der Quantenphasenübergang aufgrund der Wahl der Trimerisierung und des Ringaustausches ermittelt. Das Quantenphasendiagramm besteht aus einer

superfluiden Phase und einer \mathbb{Z}_2 -Quantenspinflüssigkeitsphase. In diesen Phasen werden die Spinsteifigkeit, der statische und der dynamische Strukturfaktor näher untersucht. In der superfluiden Phase werden die Anregungen mit Ergebnissen der linearen Spinwellentheorie verglichen.

Danach wird in Abschnitt 5.2 der Übergang des planaren **XY-Ferromagnet vom Quadrat- zum Dreiecksgitter** mit Ringaustausch gezeigt. Die Anisotropie der nächsten-Nachbar-Wechselwirkung und der Ringaustausch führen zu einem Quantenphasendiagramm mit drei Phasen, eine ferromagnetische, eine VBS- und eine Néel-Phase. Dabei wird der Phasenübergang mittels der lokalen Ordnungsparameter mit der QMC ermittelt. Außerdem werden die elementaren Anregungen mithilfe der linearen Spinwellentheorie beschrieben.

Am Ende wird in Kapitel 6 eine Zusammenfassung der Erkenntnisse und ein Ausblick auf relevante Fragestellungen gegeben.

Quanten-Monte-Carlo-Methode

Hier wird die Quanten-Monte-Carlo-Methode (QMC) mit stochastischer Reihenentwicklung (SSE) präsentiert, da diese für unfrustrierte Systeme bei endlichen Temperaturen sehr leistungsfähig ist. Sie wurde auf Grundlage der Handscomb-Methode [91] von Anders W. Sandvik weiterentwickelt [92]. Hierbei handelt es sich um eine Hochtemperatur-Reihenentwicklung der Zustandssumme, die nur die ersten Summanden mit dem größten Gewicht berücksichtigt. Die Beschreibung und Entwicklung in diesem Kapitel basiert auf Vorarbeiten der ehemaligen Arbeitsgruppenmitglieder Simon Großjohann [93], Yousef Rahnavard [94] und Björn Willenberg [95].

Dieses Kapitel ist folgendermaßen strukturiert. Am Anfang wird das Grundprinzip der Monte-Carlo-Methode im Abschnitt 2.1 erläutert. Zu Beginn des Abschnitts 2.2 wird die **SSE** allgemein beschrieben und anschließend werden die Unterschiede zwischen der Bond- und Plaquette-SSE mit Zwei- bzw. Vier-Spin-Wechselwirkungen gezeigt. Elementarer Bestandteil der Methode sind drei verschiedene Updates, die die Operortypen und -positionen verändert. In Abschnitt 2.2.3 wird das **Diagonal-Update** beschrieben, welches Operatoren entweder einfügen oder löschen kann. Danach werden in Abschnitt 2.2.4 mit dem **Loop-Update** die Typen der Operatoren verändert. Das **Multibranch-Cluster-Update** im Abschnitt 2.2.5 wird nur in der Plaquette-SSE verwendet, um die Simulation bei dominanter Vier-Spin-Wechselwirkung zu beschleunigen. In Abschnitt 2.3 wird die Berechnung verschiedener thermodynamischer **Observablen** und ihrer Fehlerberechnung gezeigt. Anschließend wird die Messung der statischen und dynamischen Strukturfaktoren vorgestellt. Dafür wird in Abschnitt 2.4 die analytische Fortsetzung beschrieben, welche zum Extrahieren des dynamischen Spin-Strukturfaktors aus den imaginärzeitlichen Greenschen Funktionen verwendet wird. In dieser Arbeit wird dazu die **Maximum-Entropie-Methode** genutzt.

2.1 Monte-Carlo-Sampling

Mit der Monte-Carlo-Methode wird der Zustandsraum des untersuchten Spinsystems zufällig gescannt und die gewünschten Observablen werden über die resultierenden Konfigurationen gemittelt. Dabei garantiert das **Gesetz der großen Zahlen**, dass sich bei mehr zufälligen Konfigurationen der gemittelte Wert dem tatsächlichen Wert annähert. Der Mittelwert der Observable A ist durch

$$\langle A \rangle = \sum_{c_i} P(c_i) A(c_i) \quad (2.1)$$

gegeben, wobei $P(c_i)$ die Wahrscheinlichkeit der Konfiguration ist. Da der Zustandsraum, welcher alle Konfigurationen beinhaltet, zu groß ist, werden nur die wichtigsten Konfigurationen ausgewählt. Dies wird auch **Importance Sampling** genannt. Das Gewicht einer Konfiguration c_i wird thermodynamisch durch

$$W_i = \frac{1}{\mathcal{Z}} e^{-\beta E_{c_i}} \quad (2.2)$$

beschrieben, wobei \mathcal{Z} die Zustandssumme, $\beta = 1/T$ die inverse Temperatur und E_{c_i} die Energie der Konfiguration ist. Weil W_i eine Funktion der unbekannten Zustandssumme ist, können die Gewichte nicht direkt berechnet werden. Jedoch kann das Verhältnis der Gewichte durch die Energiedifferenz zweier Konfigurationen berechnet werden

$$\frac{W_j}{W_i} = e^{-\beta(E_{c_j} - E_{c_i})}. \quad (2.3)$$

Der **Metropolis-Algorithmus** [96] profitiert von dieser Tatsache und nutzt dazu eine **Markov-Kette** $c_0 \rightarrow c_1 \rightarrow c_2 \rightarrow \dots \rightarrow c_i \rightarrow c_j \rightarrow \dots$ mit den Übergangswahrscheinlichkeiten

$$P_{c_i \rightarrow c_j} = \min \left(1, \frac{W_j}{W_i} \right), \quad (2.4)$$

um den Zustandsraum, beginnend mit einer zufälligen Konfiguration, zu durchlaufen. Der Algorithmus erfüllt die **Ergodizität**, das heißt, dass jede gültige Konfiguration

durch eine endliche Anzahl von Schritten erreicht werden kann. Außerdem gilt das **detaillierte Gleichgewicht**¹

$$\frac{P_{c_i \rightarrow c_j}}{P_{c_j \rightarrow c_i}} = \frac{W_j}{W_i}, \quad (2.5)$$

welches aussagt, dass es keine Vorzugsrichtung in der Markov-Kette gibt, solange die Wahrscheinlichkeiten für den Hin- und Rückweg zwischen zwei Konfigurationen gleich sind. Das beschriebene Sampling wird zur Untersuchung der Erwartungswerte aus Gl (2.1) verwendet.

¹engl. *detailed balance*

2.2 Stochastische Reihenentwicklung

Die stochastische Reihenentwicklung basiert auf der Handscomb-Methode und ist ein QMC-Verfahren für Spin- und Bosonengittermodelle [87, 88]. Der Schwerpunkt dieser Arbeit lag dabei in der Weiterentwicklung der Bond- und Plaquette-SSE. Für diese beiden Fälle unterscheidet sich die Methode, da ein Bond aus zwei Spins und eine Plaquette aus vier Spins besteht. Zuerst wird eine Unterscheidung dieser beiden Fälle in Abschnitt 2.2.1 getätigt und danach wird die SSE allgemein beschrieben. Die Begriffe Bond und Plaquette sind außerhalb des Abschnitts 2.2.1 gleichbedeutend.

Zuerst wird der Hamiltonoperator \mathcal{H} in Bondoperatoren umformuliert. Dafür werden die N_b Bonds des Spinsystems aus dem Hamiltonoperator in Gl. (1.2) in verschiedene Operatortypen aufgeteilt. Diese Methode ist in der S^z -Basis formuliert und es existieren in der Bond-SSE $N_t = 2$ und in der Plaquette-SSE $N_t = 3$ verschiedene Operatortypen. Der diagonale C -Operator ($t = 1$) flippt keinen Spin, wobei die off-diagonalen J -Operatoren ($t = 2$) zwei und die K -Operatoren ($t = 3$) vier Spins flippen, vgl. Abb. 2.1. Damit folgt der Hamiltonoperator in der Bondschreibweise

$$\mathcal{H} = - \sum_b^{N_b} \left(\underbrace{H_{1,b}}_{\text{diag}} - \sum_{t=2}^{N_t} \underbrace{H_{t,b}}_{\text{offdiag}} \right), \quad (2.6)$$

wobei die Operatoren $H_{t,b}$ im folgenden Abschnitt näher erläutert werden.

2.2.1. Bond- vs. Plaquette-Operatoren

Im Folgenden wird eine Unterscheidung der Bond- und Plaquette-SSE erfolgen, da sich die Hamiltonoperatoren unterscheiden. Die Matricelemente sind nur von den umgebenen Spins abhängig. Die Matricelemente werden vor jeder Simulation berechnet und gespeichert.

Bond-SSE

Der Hamiltonoperator des Heisenberg-Modells in der Bond-SSE hat die Form

$$\mathcal{H} = \sum_{ij} J_{ij} \left[\frac{1}{2} \left(S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^+ \right) + \Delta S_i^z S_j^z \right] + h \sum_i S_i^z \quad (2.7)$$

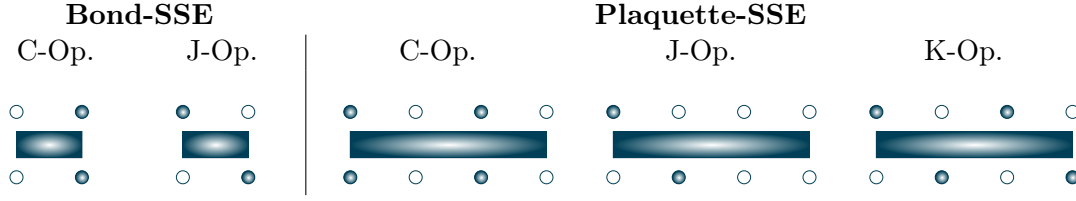


Abbildung 2.1.: Verschiedene Operortypen in der Bond- und Plaquette-SSE. Leer-/gefüllte Kreise stellen ein Spin- \downarrow/\uparrow da. Ein Rechteck stellt einen Operator da.

und wird für die Modelle in Kapitel 3 und 4 verwendet. Mit Plätzen i und j am Bond b können die Matrixelemente abhängig vom Spinzustand für die diagonalen C - ($H_{1,b}$) und off-diagonalen J -Operatoren ($H_{2,b}$) berechnet werden

$$H_{1,b} = C + \epsilon - J_{ij} \Delta S_i^z S_j^z - h (S_i^z + S_j^z) \quad (2.8)$$

$$H_{2,b} = \frac{J_{ij}}{2} (S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^+) . \quad (2.9)$$

Es ist notwendig, dass die Matrixelemente von $H_{1,b}$ nicht negativ sind, deshalb wird die Konstante C so gewählt, dass alle Matrixelemente nicht negativ sind. Ein endlicher positiver Wert der Matrixelemente von $H_{1,b}$ kann durch $\epsilon = S/2$, wobei S die Spinquantenzahl beschreibt, erfolgen und ermöglicht eine bessere Performance der Simulation [92], da dadurch mehr Operatoren in das System eingefügt werden können.

Plaquette-SSE

Der Hamiltonoperator des XY-Modells mit Vier-Spin-Ringtausch in der Plaquette-SSE

$$\mathcal{H} = \sum_{ij} \frac{J_{ij}}{2} (S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^+) + \sum_{ijkl} K_{ijkl} (S_i^+ S_j^- S_k^+ S_l^- + S_i^- S_j^+ S_k^- S_l^+) \quad (2.10)$$

hat kein Vorzeichenproblem für die Parameter $J_{ij}, K_{ijkl} \geq 0$ und wird in Kapitel 5 verwendet. Der Hamiltonoperator kann durch die Plaquette b an den Plätzen i, j, k, l umgeschrieben werden. Im Multibranch-Cluster-Update ist die Konstante $C_b = K_b$ so gewählt, dass die C - und K -Operatoren an der Plaquette b das gleiche Gewicht haben. Ansonsten wird die Konstante $C_b = \epsilon = S/2$ gewählt, um genug Operatoren einfügen zu können. Mit $b \rightarrow ijkl$ sind die Matrixelemente für die diagonalen C - ($H_{1,b}$), off-diagonalen J - ($H_{2,b}$) und K -Operatoren ($H_{3,b}$) abhängig vom Spinzustand

$$H_{1,b} = C_{ijkl} I_{ijkl} = \begin{cases} K_{ijkl} I_{ijkl} & \text{im Multibranch-Cluster-Update,} \\ \epsilon I_{ijkl} & \text{sonst} \end{cases} \quad (2.11)$$

$$H_{2,b} = \frac{J_{ij}}{2} \left(S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^+ \right) I_{kl} \quad (2.12)$$

$$H_{3,b} = K_{ijkl} \left(S_i^+ S_j^- S_k^+ S_l^- + S_i^- S_j^+ S_k^- S_l^+ \right) \quad (2.13)$$

Die J -Operatoren $H_{2,b}$ existieren für alle möglichen Permutationen von $ijkl$. I_{ijkl} und I_{kl} sind $\mathbb{1}$ -Operatoren.

2.2.2. Entwicklung der Zustandssumme

Mit der Reihendarstellung der Exponentialfunktion lässt sich die Zustandssumme \mathcal{Z} des Hamiltonoperators aus Gl. (2.6) folgendermaßen formulieren

$$\mathcal{Z} = \text{Tr} \left(e^{-\beta \mathcal{H}} \right) = \text{Tr} \left(\sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-\beta)^n}{n!} \mathcal{H}^n \right) = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-\beta)^n}{n!} \sum_{\alpha} \langle \alpha | \mathcal{H}^n | \alpha \rangle, \quad (2.14)$$

wobei $|\alpha\rangle = |S_1^z, S_2^z, \dots, S_{N_b}^z\rangle$ die Zustände in der S^z -Basis sind. Zur Optimierung des Speicherbedarfs wird der sogenannte Operatorstring $S_n = [t_1, b_1], [t_2, b_2], \dots, [t_n, b_n]$ der Länge n eingeführt. Jedes Element ist entweder ein diagonalen $t = 1$ oder off-diagonalen $t > 1$ Operatortyp $t \in 1, \dots, N_t$ und gehört zum Bond $b \in 1, \dots, N_b$. Damit folgt für die Zustandssumme, dass die Summe über den Operatorstring S_n alle möglichen Produkte der Operatoren $H_{t(p),b(p)}$ beinhaltet

$$\mathcal{Z} = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\beta^n}{n!} \sum_{\alpha} \sum_{S_n} (-1)^{n_{\text{offdiag}}} \left\langle \alpha \left| \prod_{p=1}^n H_{t(p),b(p)} \right| \alpha \right\rangle, \quad (2.15)$$

wobei n_{offdiag} die Anzahl der off-diagonalen Operatoren ist. Da die Summanden der höheren Ordnungen der Hochtemperaturentwicklung nur ein kleines Gewicht haben, betrachtet man nur eine Reihenentwicklung bis zu einem endlichen M und bricht die Reihe ab. Zur Vereinfachung des Algorithmus läuft dafür der Operatorstring nur noch bis zu einem festen M , indem jeweils $M-n$ $\mathbb{1}$ -Operatoren, auch $H_{0,0} \equiv \mathbb{1}$ genannt, eingefügt werden. Da es $\binom{M}{n}$ Möglichkeiten gibt, diese einzusetzen, sieht die Zustandssumme folgendermaßen aus

$$\mathcal{Z} = \sum_{\alpha} \sum_{S_M} \frac{\beta^n (M-n)!}{M!} \left\langle \alpha \left| \prod_{p=1}^M H_{t(p), b(p)} \right| \alpha \right\rangle, \quad (2.16)$$

wobei n die Anzahl der diagonalen und off-diagonalen Operatoren im System ist. Auf bipartiten und unfrustrierten Gittern verschwindet das Vorzeichen $(-1)^{n_{\text{offdiag}}}$ aus Gl. (2.15), da periodische Randbedingungen entlang der Entwicklungsordnung p gelten

$$|\alpha(0)\rangle = \prod_{p=0}^M H_{t(p), b(p)} |\alpha(0)\rangle = |\alpha(M)\rangle. \quad (2.17)$$

und off-diagonale Operatoren deshalb nur paarweise auftreten. In nicht-bipartiten oder frustrierten Systemen ist eine ungerade Anzahl an off-diagonalen Operatoren möglich und damit hat der Algorithmus ein Vorzeichenproblem, welches in den untersuchten Modellen keine Rolle spielt. Ein Metropolis-Sweep beinhaltet ein Diagonal-, ein Loop- und in der Plaquette-SSE zusätzlich ein Multibranch-Cluster-Update. Im Folgenden werden die drei Updates erläutert.

2.2.3. Diagonal-Update

Das Diagonal-Update verändert die Länge des Operatorstrings durch Hinzufügen und Entfernen von diagonalen Operatoren innerhalb des Operatorstrings. $\mathbb{1}$ -Operatoren werden durch diagonale Operatoren ersetzt und andersherum. Off-diagonale Operatoren bleiben im Diagonal-Update unberührt und nur $\mathbb{1}$ -Operatoren und diagonale Operatoren werden betrachtet.

Für N_b Bonds gibt es N_b Möglichkeiten, einen $\mathbb{1}$ -Operator an der Position p mit einem diagonalen Operator zu ersetzen. Die Wahrscheinlichkeit aus Gl (2.4) wird damit zu

$$P([0, b(p)] \rightarrow [1, b(p)]) = \min \left(1, N_b \frac{W_{[1, b(p)]}}{W_{[0, b(p)]}} \right) \quad (2.18)$$

mit den Gewichten

$$W_{[0, b]} = \frac{\beta^n (M-n)!}{M!} \left\langle \alpha \left| \prod_{p=1}^M H_{t(p), b(p)} \right| \alpha \right\rangle, \quad (2.19)$$

$$W_{[1, b]} = \frac{\beta^{n+1} (M-(n+1))!}{M!} \left\langle \alpha \left| \prod_{p=1}^M H_{t(p), b(p)} \right| \alpha \right\rangle. \quad (2.20)$$

Die Ordnung ($n \rightarrow n + 1$) vergrößert sich und schlussendlich ergibt sich die Wahrscheinlichkeit, einen diagonalen Operator einzusetzen, mit Gl. (2.18) zu

$$P([0, b(p)] \rightarrow [1, b(p)]) = \min \left(1, \frac{N_b \beta \langle \alpha(p) | H_{1,b} | \alpha(p) \rangle}{M - n} \right). \quad (2.21)$$

Die Rückrichtung, also einen diagonalen Operator zu entfernen, verläuft analog. Die Gewichte ergeben sich wie folgt

$$W_{[1,b]} = \frac{\beta^n (M - n)!}{M!} \left\langle \alpha \left| \prod_{p=1}^M H_{t(p),b(p)} \right| \alpha \right\rangle, \quad (2.22)$$

$$W_{[0,b]} = \frac{\beta^{n+1} (M - (n - 1))!}{M!} \left\langle \alpha \left| \prod_{p=1}^M H_{t(p),b(p)} \right| \alpha \right\rangle. \quad (2.23)$$

Die Ordnung ($n \rightarrow n - 1$) wird verringert und die Wahrscheinlichkeit, einen diagonalen Operator zu entfernen, ergibt sich zu

$$P([1, b(p)] \rightarrow [0, b(p)]) = \min \left(1, \frac{M - n + 1}{N_b \beta \langle \alpha(p) | H_{1,b} | \alpha(p) \rangle} \right). \quad (2.24)$$

Es ist zu beachten, dass in Gl. 2.18 durch N_b geteilt werden muss, da es nur eine Möglichkeit gibt, einen Operator zu entfernen. Dieses Update wird für alle $p = 1, \dots, M$ durchgeführt, wobei der Zustand $|\alpha(p)\rangle$ stets geupdated werden muss. Eine Zustandsänderung des mitgeführten Zustands $|\alpha(p)\rangle$ erfolgt, wenn ein off-diagonaler Operator an der Position p auftritt. Die Berechnung der Matrixelemente $\langle \alpha(p) | H_{t,b} | \alpha(p) \rangle$ wurde im Abschnitt 2.2.1 näher erläutert.

2.2.4. Loop-Update

Im Loop-Update bleibt die Ordnung konstant und nur die Operatortypen werden verändert. Auch hier werden die Metropolis-Wahrscheinlichkeiten verwendet. Da jedoch nur existierende Operatoren verändert werden, werden die $\mathbb{1}$ -Operatoren nicht berücksichtigt. Das dazugehörige Gewicht wird berechnet mit

$$W = \frac{\beta^n}{n!} \prod_{p=1}^n \langle \alpha_{b(p)}(p) | H_{t(p),b(p)} | \alpha_{b(p-1)}(p-1) \rangle, \quad (2.25)$$

wobei $|\alpha_{b(p)}(p)\rangle$ der Zustand am Bond $b(p)$ ist und nur die Spins direkt am Bond-Operator einen Beitrag liefern.

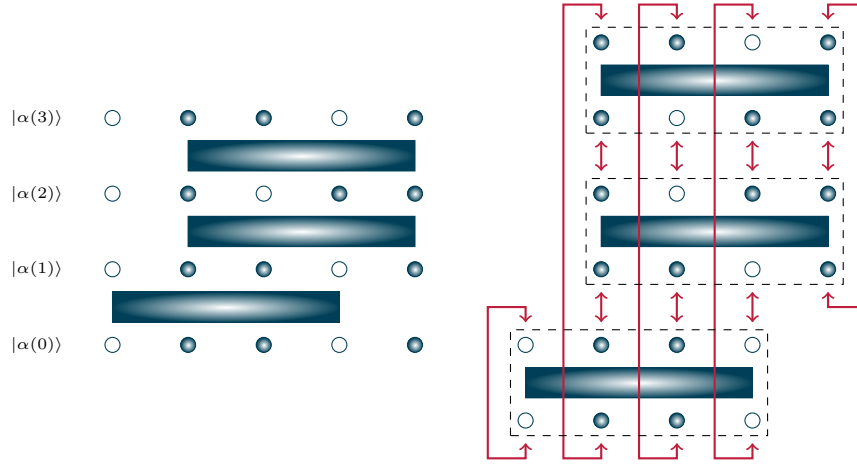


Abbildung 2.2.: Diese Abbildung ist beispielhaft für die Plaquette-SSE, da die Operatoren auf vier Spins wirken. In der Bond-SSE müssen die Operatoren auf nur zwei Spins wirken und angepasst werden. **Links** ist der Operatorstring der Zustände $|\alpha(p)\rangle$ dargestellt. Gefüllte Kreise stellen einen Spin- \uparrow und nichtgefüllte einen Spin- \downarrow da. Ein Rechteck stellt einen Operator da. **Rechts** wird die resultierende verlinkte Liste mit periodischen Randbedingungen in p -Richtung gezeigt.

Im Loop-Update müssen die Operatoren miteinander verbunden werden. Die einzelnen Spins an einem Operator werden als Operatorbeinchen bezeichnet. Die daraus resultierende verlinkte Liste ist beispielhaft in Abb. 2.2 gezeigt. Die Operatorbeinchen sind mit dem jeweiligen Beinchen in Richtung der Entwicklungsordnung p unter Berücksichtigung der periodischen Randbedingungen verlinkt. Hier werden Spins, auf die kein Operator wirkt, nicht berücksichtigt. Diese verlinkte Liste gibt im weiteren Loop-Update die Möglichkeit, Wege durch die Operatoren zu finden. Dieser geschlossene Weg wird auch Loop genannt. Dafür wird ein Operatorbeinchen zufällig ausgewählt. Der Loop beginnt an dieser Stelle. Dieses Beinchen ist das Startbeinchen. Die Wahrscheinlichkeiten zur Bestimmung des Ausgangsbeinchens werden dabei entweder mit der Heatbath-Lösung oder der Directed-Loop-Gleichung, welche am Ende dieses Abschnittes beschrieben werden, bestimmt. Die Spins werden am Eingangs- und Ausgangsbeinchen geflippt. Danach wird ein nächstes Eingangsbeinchen mithilfe der verlinkten Liste gewählt. Entspricht das neue Eingangsbeinchen dem Startbeinchen, ist der Loop geschlossen. Ist das nicht der Fall, wird ein neues Ausgangsbeinchen ausgewürfelt und der verlinkten Liste gefolgt, bis der Loop geschlossen ist. Es gibt vier Möglichkeiten, durch einen Vertex zu gehen (vgl. Abb. 2.3), den Bounce, den Switch & Reverse, den Continue Straight und den Switch & Continue.

Wenn auf einen Spin kein Operator wirkt, wird, um die Statistik zu verbessern, ein State-Update ausgeführt und der Spin mit einer Wahrscheinlichkeit von $1/2$ geflippt.

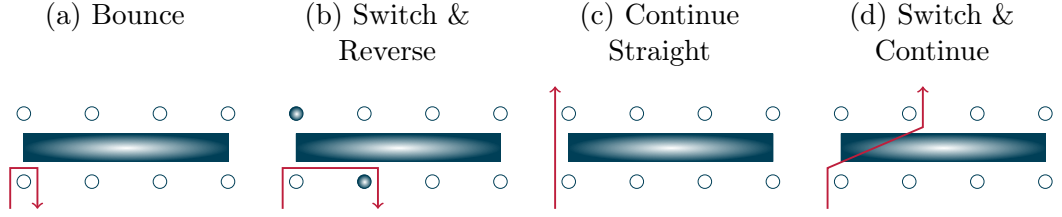


Abbildung 2.3.: Die vier möglichen Wege durch den Operator in der Plaquette SSE werden gezeigt. Ist der neue Operator kein gültiger Operatortyp, ist dieser Weg nicht erlaubt. Jeder Spin, der auf dem Weg liegt, wird geflippt. Da es nur diagonale und off-diagonale Operatoren gibt, sind auch nur Wege erlaubt, die diese wieder produzieren und damit ist das Ergebnis ein bekannter Operatortyp.

Heatbath-Lösung

Um die Wahrscheinlichkeiten für die Wege durch die Operatoren zu berechnen, gibt es mehrere Möglichkeiten. Zuerst soll dafür die Heatbath-Lösung und danach die Directed-Loop-Gleichungen vorgestellt werden. Es ist wichtig, dass das detaillierte Gleichgewicht aus Gl. (2.5) erfüllt bleibt. Die einfachste, mögliche Lösung ist die Heatbath-Lösung. Die Wahrscheinlichkeit basierend auf den Gewichten aus Gl. (2.25) ist

$$P_{e \rightarrow a}(c) = \frac{W_{e,a}(c)}{\sum_{a=0}^3 W_{e,a}(c)}, \quad (2.26)$$

um einen Operator des Vertextyps c mit dem Eingangsbeinchen e am Ausgangsbeinchen a zu verlassen. Das Gewicht wird gleich Null gesetzt, wenn ein Ausgangsbeinchen zu einem gegebenen Eingangsbeinchen keinen bekannten Operatortyp erzeugt.

Directed-Loop-Gleichungen

Um die Bounce-Wahrscheinlichkeiten zu reduzieren, werden anstelle der Heatbath-Lösung die Directed-Loop-Gleichungen verwendet. Aufgrund des detaillierten Gleichgewichts muss für die Wahrscheinlichkeiten gelten

$$P(c_i \rightarrow c_j) W(c_i) = P(c_j \rightarrow c_i) W(c_j), \quad (2.27)$$

wobei c_i und c_j eine Konfiguration aus Vertextyp, Eingangs- und Ausgangsbeinchen ist. Diese Bedingung ist für die Heatbath-Lösung erfüllt, wie sich leicht zeigen lässt

$$P(c_i \rightarrow c_j) W(c_i) = \frac{W(c_j)}{\sum_{k=0}^3 W(c_k)} W(c_i) = \frac{W(c_i)}{\sum_{k=0}^3 W(c_k)} W(c_j) = P(c_j \rightarrow c_i) W(c_j). \quad (2.28)$$

Es wird ein Gleichungssystem aufgestellt, dass neben dem detaillierten Gleichgewicht noch zwei weitere Bedingungen erfüllen muss. Einerseits muss die Summe der Wahrscheinlichkeiten für alle möglichen Ausgangsbeinchen Eins sein. Andererseits wird die Bounce-Wahrscheinlichkeit minimiert, damit der gleiche Weg nicht zurück gelaufen und so Rechenzeit verbraucht wird, die die Performance der Simulation verschlechtert. Das aufgestellte lineare Gleichungssystem, welches sich mit einem Linear Programming Solver am Anfang der Simulation lösen lässt, gibt die Wahrscheinlichkeiten für alle möglichen Ausgangsbeinchen zu einem gegebenen Eingangsbeinchen und Operatortyp an und nennt man Directed-Loop-Gleichungen. Die vollständigen Directed-Loop-Gleichungen und deren Lösungen für die untersuchten Systeme wurden bereits ausführlich diskutiert, z. B. für die anisotrope antiferromagnetische Spin-1/2 Heisenberg-Kette [92] und das Spin-1/2 XY-Modell mit Ringaustausch [97]. In dieser Arbeit werden die Directed-Loop-Gleichungen und nicht die Heatbath-Lösung genutzt.

Verallgemeinerung für Spin S

Bis jetzt wurden nur Operatoren mit Spin-1/2 behandelt. Es gibt also nur eine Möglichkeit, einen Spin zu flippen, z. B. kann ein Spin- \uparrow nur zu einem Spin- \downarrow und andersherum geflippt werden. Mit Spin-1 oder höheren Spins gibt es mehrere Spin-Flip-Möglichkeiten. Der Spin-1 mit $S^z = +1$ kann zu $S^z = 0$ oder $S^z = -1$ geflippt werden. Hier werden die sogenannten Loop-Farben δS^z eingesetzt. Eine Loop-Farbe sagt aus, um welchen Faktor die S^z -Komponente verändert wird. In diesem Beispiel kann der Faktor also entweder $\delta S^z = -1$ oder -2 sein. Bei reinen Spin-1/2-Systemen ist der Faktor immer $\delta S^z = +1$ oder -1 .

Die Loop-Farbe wird zu Beginn jedes Loops zufällig festgelegt. Dabei wird die Loop-Farbe bis zum Ende des Loops festgehalten, wobei sich das Vorzeichen der Loop-Farbe bei jedem Richtungswechsel in p -Richtung ändert.

Ein einfaches Beispiel dafür ist der Bounce. Wenn das Eingangsbeinchen ein Spin mit $S^z = -1/2$ ist und die Loop-Farbe $\delta S^z = +1$, wird der Spin geflippt und das Ausgangsbeinchen bei einem Bounce ist das Eingangsbeinchen. Durch den Richtungswechsel wird das Vorzeichen der Loop-Farbe gewechselt und ist jetzt $\delta S^z = -1$, der Spin kann jetzt wieder zurück flippen.

Typ	Eingangszustand	Abbildung
(a) $C \rightarrow C$	$ \downarrow\uparrow\downarrow\downarrow\rangle$ bzw. $ \downarrow\downarrow\downarrow\downarrow\rangle$	
(b) $C \rightarrow C$	$ \downarrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle$	
(c) $C \rightarrow K$	$ \downarrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle$	
(d) $J \rightarrow J$	$ \downarrow\uparrow\downarrow\downarrow\rangle$ bzw. $ \downarrow\downarrow\downarrow\downarrow\rangle$	
(e) $J \rightarrow J$	$ \downarrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle$ bzw. $ \downarrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle$	
(f) $K \rightarrow C$	$ \downarrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle$	

Tabelle 2.4.: Mögliche Vertextransformationen innerhalb des Multibranch-Cluster-Updates, wobei die zyklischen Permutationen und die hermitesche Konjugation der Zustände berücksichtigt werden müssen. Der rote Pfeil zeigt dabei die Eingangs- bzw. Ausgangsbeinchen an.

2.2.5. Multibranch-Cluster-Update

Nur für die Plaque-SSE muss ein drittes Update hinzugefügt werden. Das Diagonal-Update kann C -Operatoren einfügen und entfernen. Das Loop-Update kann folgende Vertextransformationen zwischen den Operatortypen durchführen $C \leftrightarrow J$ und $J \leftrightarrow K$. Für einen großen Ringaustausch K verliert die Simulation an Ergodizität und deshalb ist ein Update notwendig, welches die Transformation $C \leftrightarrow K$ erlaubt.

Das neue Multibranch-Cluster-Update ermöglicht die Generierung von mehr als einem Ausgangsbeinchen zu einem Eingangsbeinchen und diese Beschreibung folgt der Ref. [97]. Durch die Wahl von mehr als einem Ausgangsbeinchen können die Cluster sehr groß werden, wobei ein Cluster die miteinander verbundenen Operatoren meint. Die Wahl der möglichen Vertextransformationen ermöglicht aber durch den einmaligen Besuch jedes Beinchen, riesige Cluster zu vermeiden und so im Schnitt mehr kleine Cluster aus einer Handvoll Operatoren zu erzeugen, anstatt einen Cluster, der den ganzen Operatorstring

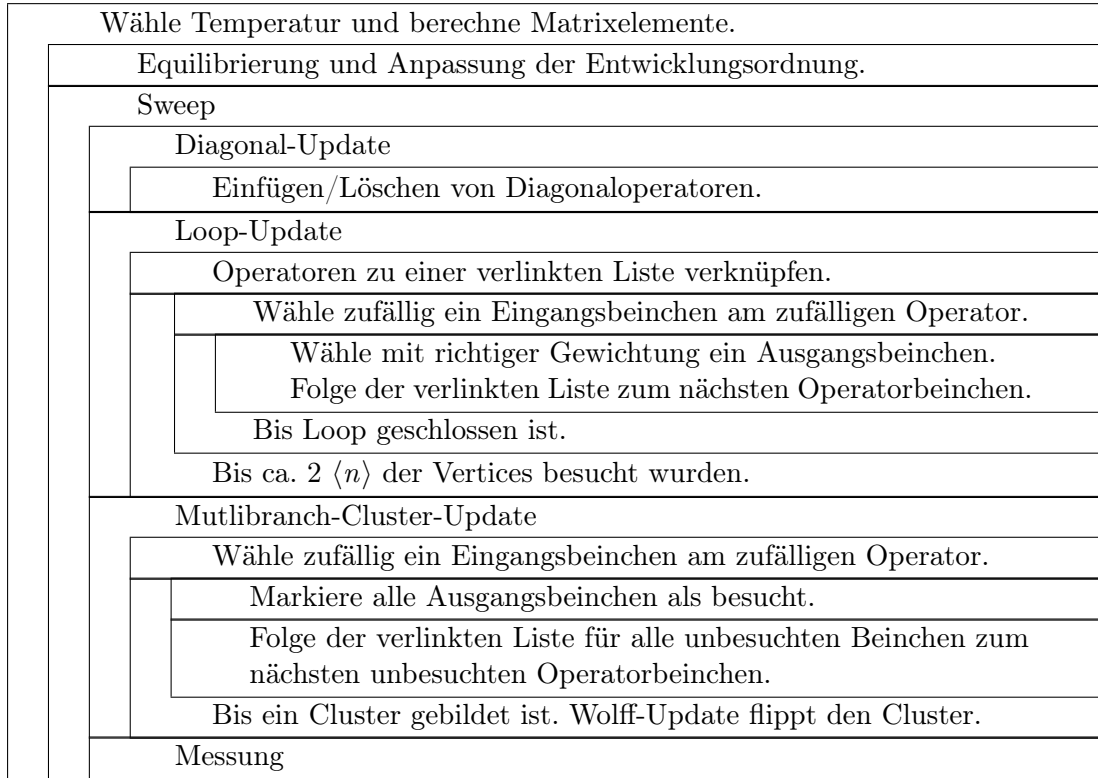


Abbildung 2.5.: Struktogramm der stochastischen Reihenentwicklung für die Plaquette-SSE.

beinhaltet. Das Multibranch-Cluster-Update ist für $S = 1/2$ formuliert. In Tabelle 2.4 sind die sechs Vertextransformationen gezeigt, die anhand der möglichen Operortypen (C , J , K) und aller Eingangszustände ($|\downarrow\uparrow\downarrow\rangle$, $|\downarrow\downarrow\downarrow\rangle$, $|\downarrow\uparrow\uparrow\rangle$, $|\downarrow\uparrow\downarrow\rangle$) inklusive der zyklischen Permutationen klassifiziert sind.

Das Multibranch-Cluster-Update läuft folgendermaßen ab. Zuerst wird ein zufälliges Eingangsbeinchen gewählt, welches noch zu keinem Cluster gehört. Zu dem neuen Cluster werden das Eingangsbeinchen und die Ausgangsbeinchen anhand der Vertextransformationen in Tabelle 2.4 hinzugefügt. Alle Ausgangsbeinchen werden als besucht markiert. Die Ausgangsbeinchen können anhand der verlinkten Liste nun zu den nächsten Operatoren verfolgt werden und zum Cluster hinzugefügt werden, falls das neue Eingangsbeinchen noch nicht besucht wurde. Die konstruierten Cluster werden mit einer Wahrscheinlichkeit von $p = 1$ ($p = 1/2$) nach Wolff [98] (Swendsen-Wang [99]) geflippt. Bei dem Wolff-Update wird nur ein zufälliger Cluster erzeugt und dann geflippt. Beim Swendsen-Wang-Update wird nach dem Finden aller Cluster und damit vor dem nächsten Diagonal- bzw. Loop-Update jeder einzelne Cluster unabhängig voneinander mit der Wahrscheinlichkeit $p = 1/2$ geflippt. Zur Untersuchung der Modelle dieser Arbeit wurde das Wolff-Update verwendet, da es eine bessere Performance bietet.

2.2.6. Struktogramm

Um den Ablauf einer gesamten Simulation zu verstehen, wird in diesem Abschnitt ein Überblick gegeben. Da die Systeme im thermodynamischen Gleichgewicht betrachtet werden, muss man zuerst das System equilibrieren. Dazu werden 10% der Rechenzeit genutzt, danach beginnen erst die Messungen der thermodynamischen Observablen. Außerdem wird während der Equilibrierung noch die Entwicklungsordnung M angepasst. Da die Anzahl der Operatoren n für feste Parameter einer scharfen Verteilung folgt [89], wird die Entwicklungsordnung M , falls nötig, während der Equilibrierung nach jedem Diagonal-Update angepasst. Wenn das Anderthalbfache der maximalen Ordnung $1.5n_{\max}$ die Entwicklungsordnung M übersteigt, wird M mit dem Faktor 1.5 erhöht. In einer Simulation werden $\sim 10^6$ Sweeps pro festem Parameter-Satz gerechnet. Ein Struktogramm des genutzten Programms ist in Abbildung 2.5 dargestellt. So wird zuerst eine Temperatur gewählt, um die Equilibrierung mit der Anpassung der Entwicklungsordnung durchzuführen. Danach werden die Sweeps durchlaufen, in dem ein Diagonal-Update, mehrere Loop-Updates und ein Multibranch-Cluster-Update durchgeführt werden. Am Ende müssen noch die Observablen gemessen werden und nun kann eine Simulation bei einem anderen Temperaturpunkt durchgeführt werden.

2.3 Observablen

Thermodynamische Größen können nicht direkt gemessen werden, deshalb wird in diesem Abschnitt erklärt, wie die benötigten Größen aus den verfügbaren Messgrößen berechnet werden können. Die benötigten Größen werden nach jedem Sweep gemessen, um am Ende der Simulation einen gemittelten Wert zu erhalten. Für den restlichen Teil der Arbeit sind die Konstanten $\hbar \equiv 1$ und $k_B \equiv 1$ gesetzt.

2.3.1. Energie

Die Energie E im kanonischen Ensemble ergibt sich aus der Zustandssumme gemäß

$$E = -\frac{\partial}{\partial \beta} \ln \mathcal{Z} = -\frac{1}{\mathcal{Z}} \frac{\partial}{\partial \beta} \mathcal{Z} \quad (2.29)$$

und mit Gl. (2.16) kann diese zu

$$E = -\frac{1}{\mathcal{Z}} \frac{\partial}{\partial \beta} \left[\sum_{S_M} \frac{\beta^n (M-n)!}{M!} \text{Tr} \left(\prod_{p=1}^M H_{t(p), b(p)} \right) \right] \quad (2.30)$$

$$= -\frac{\sum_{S_M} n \frac{\beta^{n-1} (M-n)!}{M!} \text{Tr} \left(\prod_{p=1}^M H_{t(p), b(p)} \right)}{\sum_{S_M} \frac{\beta^n (M-n)!}{M!} \text{Tr} \left(\prod_{p=1}^M H_{t(p), b(p)} \right)} \quad (2.31)$$

$$= -\frac{1}{\beta} \langle n \rangle \quad (2.32)$$

vereinfacht werden, wobei β die inverse Temperatur und $\langle n \rangle$ die gemittelte Länge des Operatorstrings ist. $N_b C$, wie in Abschnitt 2.2.1 eingeführt, muss zur Energie addiert werden.

2.3.2. Magnetisierung

Zur Berechnung der Magnetisierung M wird die Zustandssumme \mathcal{Z} verwendet

$$\mathcal{Z} = \text{Tr} \left(e^{-\beta(H_0 - BS^z)} \right), \quad (2.33)$$

wobei $H_0 = \sum_{ij} J_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j - C$ und das homogene Magnetfeld $\sum_i h_i S_i^z = BS^z$ ist. Aus der freien Energie F ergibt sich dann

$$M = -\frac{\partial F}{\partial B} = \frac{\partial}{\partial B} \left(\frac{1}{\beta} \ln \mathcal{Z} \right) = \frac{1}{\beta} \frac{1}{\mathcal{Z}} \frac{\partial \mathcal{Z}}{\partial B} \quad (2.34)$$

$$= \frac{1}{\beta \mathcal{Z}} \frac{\partial}{\partial B} \text{Tr} \left(e^{-\beta(H_0 - BS^z)} \right) \quad (2.35)$$

$$= \frac{1}{\mathcal{Z}} \text{Tr} \left(S^z e^{-\beta(H_0 - BS^z)} \right) \quad (2.36)$$

$$= \langle S^z \rangle . \quad (2.37)$$

2.3.3. Suszeptibilität

Die Suszeptibilität χ kann aus der Magnetisierung berechnet werden

$$\chi = \frac{\partial M}{\partial B} = \frac{\partial}{\partial B} \left[\frac{1}{\mathcal{Z}} \text{Tr} \left(S^z e^{-\beta(H_0 - BS^z)} \right) \right] \quad (2.38)$$

$$= -\frac{\beta}{\mathcal{Z}^2} \left[\text{Tr} \left(S^z e^{-\beta(H_0 - BS^z)} \right) \right]^2 + \frac{\beta}{\mathcal{Z}} \text{Tr} \left((S^z)^2 e^{-\beta(H_0 - BS^z)} \right) \quad (2.39)$$

$$= \beta \left[\langle (S^z)^2 \rangle - \langle S^z \rangle^2 \right] , \quad (2.40)$$

wobei $S^z = \frac{1}{N} \sum_i S_i^z$ die mittlere S^z -Komponenten aller Spins ist.

2.3.4. Spinsteifigkeit

Die Spinsteifigkeit

$$\rho_S = \left. \frac{\partial^2 F(\phi)}{\partial \phi^2} \right|_{\phi=0} \quad (2.41)$$

ist über die freie Energie $F(\phi)$ definiert, wobei der Winkel $\phi = \Phi/L$ ein Twist zum benachbarten Spin in der xy -Ebene ist. L ist dabei die Anzahl der Bonds entlang einer Raumrichtung. Bei $T = 0$ wird die freie Energie durch die Grundzustandsenergie $E(\phi)$ ersetzt. Die Implementierung für diese Größe folgt den Referenzen [89, 100–102]. Die Messung der Spinsteifigkeit in der SSE basiert dabei auf der Messung der Windungszahl W_α für die Raumrichtungen $\alpha = x, y, z$. Die Windungszahl W_α ist folgendermaßen definiert

$$W_\alpha = \frac{1}{L_\alpha} \sum_b N_{b,\alpha} , \quad (2.42)$$

wobei L_α die Anzahl der Bonds in die jeweilige Raumrichtung ist. Wenn der Bond-Operator einen Netto-Spinstrom entlang der $+$ oder $-$ Richtung transportiert, was mit den Operatoren S^+S^- oder S^-S^+ direkt im Operatorstring erkannt werden kann, ist das Vorzeichen des Phasenfaktors $N_{b,\alpha} = \pm 1$ entsprechend gegeben. Damit kann die Spinsteifigkeit folgendermaßen gemessen werden

$$\rho_S = \frac{1}{d\beta} \sum_{\alpha}^d \langle W_{\alpha}^2 \rangle, \quad (2.43)$$

wobei d die Dimension ist.

2.3.5. Binning

Die Messgrößen sind miteinander korreliert, da die Konfigurationen immer durch eine kleine Änderung der alten Konfiguration entstehen. Der statistische Fehler wird mithilfe der Binning-Methode bestimmt [103]. Dazu werden die n -mal berechnete Messgröße A in k Bins der Länge $l = n/k$ aufgeteilt. Der Mittelwert jedes Bins b ist dann

$$\bar{A}_b = \frac{1}{l} \sum_{i=bl}^{(b+1)l-1} A(i), \quad b = 0, \dots, (k-1) \quad (2.44)$$

und damit ist die Varianz

$$\sigma^2 = \frac{1}{k(k-1)} \sum_{b=0}^{k-1} (\bar{A}_b - \bar{A})^2, \quad \bar{A} = \frac{1}{n} \sum_{i=0}^{n-1} A(i), \quad (2.45)$$

wobei \bar{A} der Mittelwert von A ist und die Standardabweichung σ die Wurzel aus der Varianz ist. Die beste Wahl der Größe der Bins kann durch eine Analyse von Simulationen mit verschiedenen Binsgrößen ermittelt werden. Eine Analyse der resultierenden Fehlerbalken hat ergeben, dass eine gute Wahl eine Binsgröße von $k = 50$ ist [95].

2.3.6. Strukturfaktoren

Innerhalb der Simulation werden Korrelationsfunktionen im Realraum gemessen. Daraus lassen sich dann der statische longitudinale Spin-Strukturfaktor (SSSF) $S_S(\mathbf{q})$, der statische transversale Plaquette-Strukturfaktor (SPSF) $S_P(\mathbf{q})$ und der dynamische Spin-Strukturfaktor (DSSF) $S(\mathbf{q}, \omega)$ ermitteln.

Statistischer Spin-Strukturfaktor

Der longitudinale SSSF $S_S(\mathbf{q})$ kann einfach während der Simulation durch das Produkt der S^z -Komponenten zwischen allen Plätzen auf dem Gitter und mithilfe einer Fourier-Transformation zum Impuls \mathbf{q} bestimmt werden

$$S_S(\mathbf{q}) = \frac{1}{N} \sum_{i,j} e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)} \langle S_i^z S_j^z \rangle . \quad (2.46)$$

Statistischer Plaquette-Strukturfaktor

Der transversale SPSF $S_p(\mathbf{q})$ lässt sich nur in der Plaquette-SSE mit $K > 0$ berechnen

$$S_p(\mathbf{q}) = \frac{1}{N} \sum_{a,b} e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{r}_a - \mathbf{r}_b)} \langle P_a P_b \rangle , \quad (2.47)$$

wobei P_a der Plaquette-Operator mit dem Index $a \rightarrow ijkl$ ist. Die Plaquette-Korrelationsfunktion kann berechnet werden durch

$$\langle P_a P_b \rangle = \frac{1}{\beta^2 K_a K_b} \langle (n-1) \mathcal{N}(H_{3,a}, H_{3,b}) \rangle , \quad (2.48)$$

wobei $\mathcal{N}(H_{3,a}, H_{3,b})$ die Anzahl der aufeinanderfolgenden Operatoren im Operatorstring mit den Indices a, b unter Beachtung der periodischen Randbedingung aus Gl. (2.17) sind [104]. Außerdem sind K_a und K_b die Ringaustauschkonstanten der Plaquetten P_a bzw. P_b .

Dynamischer Spin-Strukturfaktor

Neben den statischen Strukturfaktoren lassen sich auch dynamische Größen bestimmen, welche abhängig von der Zeit sind. Deshalb benötigt man für die Berechnung mehr als den Zustand $|\alpha(0)\rangle$. In der SSE wird dafür die Entwicklungsordnung Δm genutzt und in eine Imaginärzeit τ umgewandelt, die genauere Beschreibung dazu wird in Gl. (2.58) erfolgen. Hier werden die longitudinalen Korrelationen $S^{zz} = \langle S_i^z(\tau) S_j^z(0) \rangle$ und transversalen Korrelationen $S^{+-} = \langle S_i^+(\tau) S_j^-(0) \rangle$ beschrieben. Die Größen müssen von der Imaginärzeit τ zur realen Frequenz ω analytisch fortgesetzt werden, siehe Abschnitt 2.4.

Longitudinale Korrelationsfunktion

Die S^{zz} -Korrelationsfunktion kann während des Diagonal-Updates berechnet werden. Die Berechnung basiert dabei auf dem Produkt $\langle S_i^z(m) S_j^z(0) \rangle$, welches der Wert S_i^z beim Zustand $|\alpha(m)\rangle$ multipliziert mit S_j^z bei $|\alpha(0)\rangle$ ist. Da das Diagonal-Update durch alle Zustände $|\alpha\rangle$ läuft, bietet es sich an, die Werte bereits hier zu speichern. Da alle Spin-Korrelationen der Entwicklungsordnung gespeichert werden müssen, also $N - M$ Werte mit N der Anzahl der Spins und M der maximalen Entwicklungsordnung, ist die Speichernutzung im Gegensatz zu statischen Größen viel größer.

Transversale Korrelationsfunktion

Verglichen zu der S^{zz} -Korrelationsfunktion, ist die Berechnung der S^{+-} -Korrelationsfunktion komplizierter. Die Berechnung wird während des Loop-Updates vorgenommen, da dort die Operatoren $S^+ S^-$ durchlaufen werden. Während der Konstruktion eines Loops wird gezählt, wie oft der Loop bei jedem Δm an einem Operator $\langle S_i^+(\Delta m) S_j^-(0) \rangle$ vorbeiläuft. Man kann ausnutzen, dass die $S^+ S^-$ -Operatoren und die $S^- S^+$ -Operatoren ineinander umgeformt werden können, dazu betrachtet man

$$\langle S^+(\tau) S^-(0) \rangle = \langle e^{\tau \mathcal{H}} S^+ e^{-\tau \mathcal{H}} S^- \rangle. \quad (2.49)$$

Die Exponentialfunktionen können als Reihe entwickelt werden. Innerhalb der Spurbildung kann zyklisch vertauscht werden und es gilt

$$\langle S_i^+(\tau) S_j^-(0) \rangle = \langle S_i^-(\beta - \tau) S_j^+(0) \rangle \quad (2.50)$$

$$\langle S_i^+(m) S_j^-(0) \rangle = \langle S_i^-(M - m) S_j^+(0) \rangle. \quad (2.51)$$

Damit gibt es vier Möglichkeiten, die hier näher beschrieben werden. Die vier Fälle sind auch in Abb. 2.6 gezeigt. Der Loop kann entweder nach oben oder unten beginnen und die einzigen möglichen Loop-Farben sind $\delta S^z = +1$ und -1 .

Fall 1: Spin zeigt nach oben (Loop-Farbe $\delta S^z = -1$) und der Loop läuft nach oben. Demnach ist ein $S^+ S^-$ -Operator im System. Die Bewegung ist nach oben, d. h. ein S^+ -Operator bewegt sich nach oben. Es muss daher die Größe

$$\langle S_i^+(\Delta m) S_j^-(0) \rangle \quad (2.52)$$

berechnet werden. Es werden also alle Besuche der Koordinate $(\Delta m, i, j)$ gezählt, wobei Δm (modulo M) immer positiv ist. Wenn der Loop geschlossen wird, muss beachtet

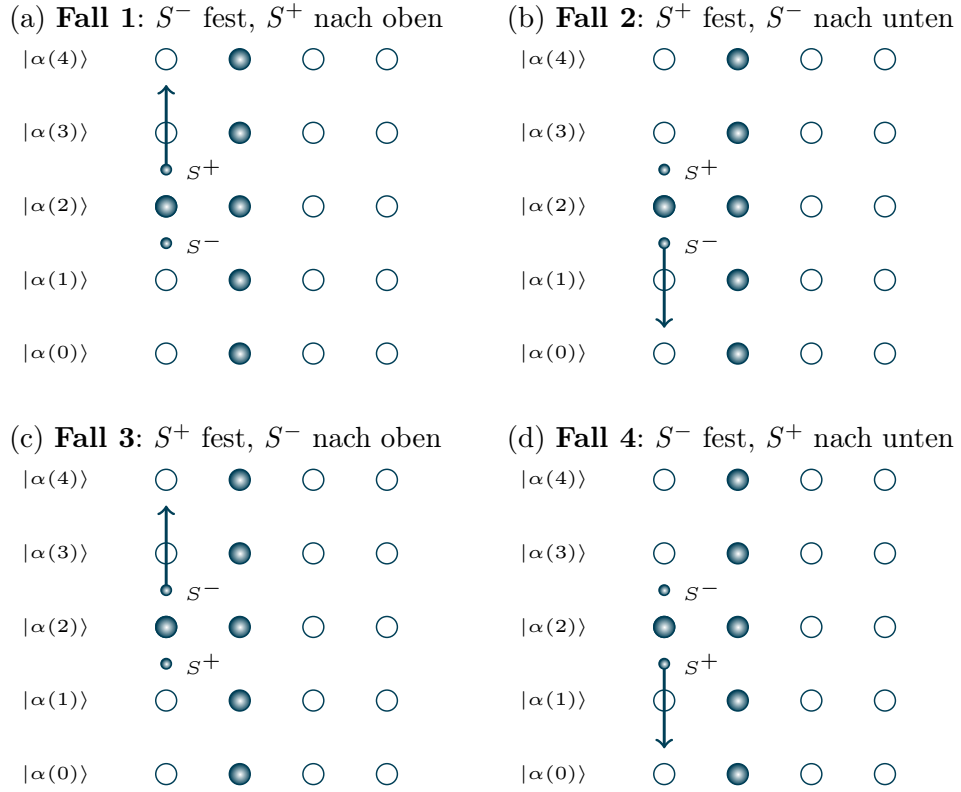


Abbildung 2.6.: Vier verschiedene Fälle, wobei ein Operator fixiert ist und der andere durch das System wandert und Spins flippt.

werden, dass $\Delta m = 0$ und $i = j$ am Anfang und Ende des Loops gilt. Wenn der Loop von unten geschlossen wird, gibt es den Beitrag

$$\langle S_i^-(0)S_j^+(0) \rangle = \langle S_i^-(M)S_j^+(0) \rangle \neq \langle S_i^+(0)S_j^-(0) \rangle. \quad (2.53)$$

Die Ungleichheit gilt, da die Operatoren nicht vertauschen. Wenn der Loop von oben geschlossen wird, wird der Beitrag wie beim Start berechnet.

Fall 2: Spin zeigt nach oben (Loop-Farbe $\delta S^z = -1$) und der Loop läuft nach unten. Demnach ist ein S^+S^- -Operator im System. Ein S^- -Operator bewegt sich nach unten. Der Beitrag ist

$$\langle S_i^+(0)S_j^-(\Delta m) \rangle = \langle S_i^+(M - \Delta m)S_j^-(0) \rangle. \quad (2.54)$$

Es muss wieder zwischen Anfang und Ende des Loops unterschieden werden. Wenn das Ende des Loops von unten geschlossen wird, wird normal gezählt. Wird der Loop jedoch von oben geschlossen, muss der Beitrag

$$\langle S_i^+(M) S_i^-(0) \rangle \quad (2.55)$$

gezählt werden.

Fall 3: Spin zeigt nach unten (Loop-Farbe $\delta S^z = +1$) und der Loop läuft nach oben. Demnach ist ein $S^- S^+$ -Operator im System. Ein S^- -Operator bewegt sich nach oben. Der Beitrag ist

$$\langle S_i^-(\Delta m) S_j^+(0) \rangle = \langle S_j^+(M - \Delta m) S_i^-(0) \rangle. \quad (2.56)$$

Dies ist analog zum zweiten Fall.

Fall 4: Spin zeigt nach unten (Loop-Farbe $\delta S^z = +1$) und der Loop läuft nach unten. Demnach ist ein $S^- S^+$ -Operator im System. Ein S^+ -Operator bewegt sich nach unten. Der Beitrag ist

$$\langle S_i^-(0) S_j^+(\Delta m) \rangle = \langle S_j^+(\Delta m) S_i^-(0) \rangle. \quad (2.57)$$

Dies ist analog zum ersten Fall.

Jetzt kann der DSSF im Realraum durch eine Konvertierung der diskreten Entwicklungsschritte in eine kontinuierliche Imaginärzeit τ mithilfe der binomialen Verteilung wie folgt berechnet werden [104]

$$\langle S_i^\alpha(\tau) S_j^\beta(0) \rangle = \left\langle \sum_{m=0}^M \binom{M}{m} \left(\frac{\tau}{\beta} \right)^m \left(1 - \frac{\tau}{\beta} \right)^{M-m} \frac{1}{M} \sum_{p=0}^{M-1} S_i^\alpha(m+p) S_j^\beta(p) \right\rangle_W \quad (2.58)$$

Hierbei sind i, j die Plätze, $m+p, p$ die Positionen im Operatorstring und $\langle \dots \rangle_W$ beschreibt das Metropolis-Gewicht des Operatorstrings der Länge M [88, 92]. Außerdem ist hier entsprechend der gesuchten Größe für die longitudinale $\alpha\beta = zz$ und transversale Korrelationsfunktion $\alpha\beta = +-$ einzusetzen. Mit Gl. (2.58) kann der DSSF mithilfe einer Fouriertransformation im Impulsraum dargestellt werden

$$S^{\alpha\beta}(\mathbf{q}, \tau) = \frac{1}{N} \sum_{i,j} e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)} \left\langle S_i^\alpha(\tau) S_j^\beta(0) \right\rangle . \quad (2.59)$$

Mithilfe der analytischen Fortsetzung kann jetzt der DSSF auf der realen Frequenzachse ω berechnet werden, welches im nächsten Abschnitt erläutert wird.

2.4 Maximum-Entropie-Methode

In diesem Kapitel wird die verwendete Methode der analytischen Fortsetzung diskutiert. Dazu wird zuerst die Problematik der analytischen Fortsetzung erklärt. Danach werden die Maximum-Entropie-Methode (MEM) erläutert und verschiedene Möglichkeiten der Bestimmung des Regularisierungsparameters gezeigt. Es gibt noch andere mögliche Methoden, wie z. B. die stochastische analytische Fortsetzung [105], welche hier nicht weiter diskutiert wird. Dieses Kapitel basiert auf der ausführlichen Diskussion in der vorigen Masterarbeit [R4].

Analytische Fortsetzung

Bei gegebener Temperatur kann eine QMC-Simulation die Größen \bar{G}_n für entweder imaginärzeitliche Korrelationsfunktionen $G(\tau)$ bei N_τ endlichen imaginärzeitlichen Punkten τ_n oder imaginärfrequentierte Korrelationsfunktionen bei N_ω endlichen Matsubara-Frequenzen berechnen, wobei im Folgenden N gleich der Anzahl der Punkte der eingegebenen Daten \bar{G} ist. Für imaginärzeitliche Korrelationsfunktionen $\bar{G}(\tau)$ ist $N = N_\tau$. $G(\tau)$ wird im Weiteren als Greensche Funktion bezeichnet. Normalerweise kann die Spektralfunktion

$$A(\omega) = -\frac{1}{\pi} \text{Im } G(\omega + i0^+) \quad (2.60)$$

aus den Daten mittels Invertierung der Fredholm-Integralgleichung 1. Art

$$G(\tau) = \int d\omega K(\tau, \omega) A(\omega) \quad (2.61)$$

berechnet werden. $K(\tau, \omega)$ wird als Kern bezeichnet, welcher abhängig von der Greenschen Funktion gewählt werden muss, z. B. gilt für dynamische Korrelationsfunktionen [106]

$$K(\tau, \omega) = \frac{1}{\pi} \left(e^{-\tau\omega} + e^{-(\beta-\tau)\omega} \right). \quad (2.62)$$

In QMC-Simulationen werden imaginärzeitliche Korrelationsfunktionen der Art

$$G(\tau) = \langle \hat{O}(\tau) \hat{O}(0) \rangle \quad (2.63)$$

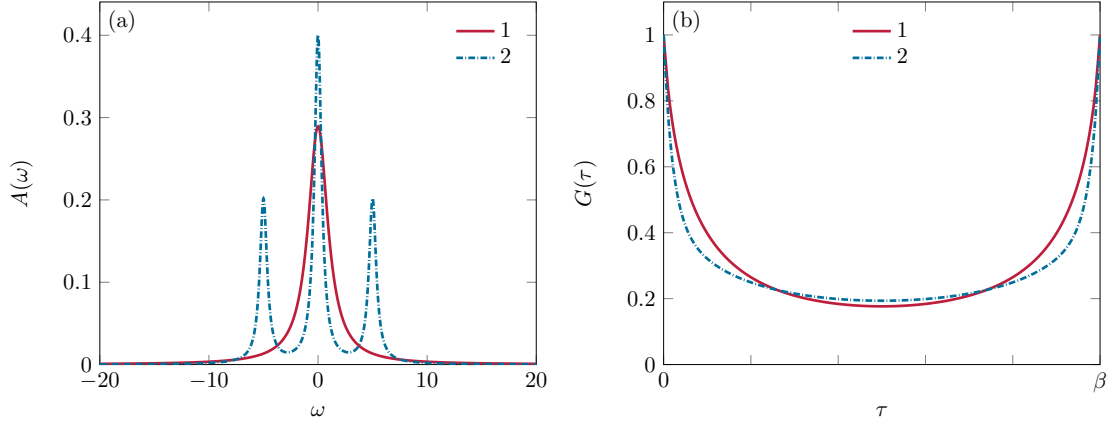


Abbildung 2.7.: (a) Zwei verschiedene Spektren $A(\omega)$ sind aus Summen von Gauß-Funktionen und (b) die dazugehörigen Greenschen Funktionen $G(\tau)$ dargestellt. Die Spektren unterscheiden sich stark, die resultierenden Greenschen Funktionen sind aber sehr ähnlich. Dies zeigt die Schwierigkeit, ein eindeutiges Spektrum zu finden.

berechnet, wobei $\hat{O}(\tau) = e^{iH\tau} \hat{O}(0) e^{-iH\tau}$ ist. Für fermionische Operatoren \hat{O} ist die Funktion $A(\omega)$ reell, für alle ω nicht-negativ und normiert auf

$$\int d\omega A(\omega) = \mathcal{N} < \infty. \quad (2.64)$$

Auch wenn Gl. (2.61) eine einfache Struktur aufweist, ist eine Inversion der Gleichung aufgrund der exponentiellen Form des Kerns schwierig. Wie von A. S. Mishchenko in [107] beschrieben, lassen sich die Größen in einer Matrix-Vektor-Schreibweise aufschreiben

$$\vec{G} = \mathbf{K} \vec{A}, \quad (2.65)$$

wobei \vec{G} und \vec{A} N_ω -dimensionale Vektoren sind. \mathbf{K} ist eine $N_\omega \times N_\tau$ -Matrix. Die Determinante von \mathbf{K} ist exponentiell klein, sodass \mathbf{K}^{-1} *ill-defined* ist. Folglich existiert eine unendliche Menge an \vec{A} , die annähernd das gleiche \vec{G} ergeben (vgl. Abb. 2.7). Die Gl. (2.65) wird auch *ill-posed* genannt, da entweder keine oder keine eindeutige Lösung von \vec{A} existiert [108]. Aufgrund der stochastischen Natur des Monte-Carlo-Algorithmus besitzt jedes \vec{G} einen statistischen Fehler. Dies kann zu einer Situation führen, in der keine Lösung \vec{A} existiert, die die Gl. (2.65) exakt löst. Deshalb wird nicht nach einer eindeutigen sondern nach einer unter bestimmten Bedingungen optimierten Lösung gesucht.

Der einfachste Ansatz ist die Methode der kleinsten Quadrate zum Finden einer Lösung \vec{A} . In der ursprünglichen Schreibweise der Methode der kleinsten Quadrate gilt dann für das Bestimmtheitsmaß χ^2

$$\chi^2[A] = \|\mathbf{K}\vec{A} - \vec{G}\|^2 = \int_0^\beta \frac{d\tau}{\sigma(\tau)^2} \left| \int d\omega K(\tau, \omega) A(\omega) - \bar{G}(\tau) \right|^2, \quad (2.66)$$

wobei σ^2 die Eigenwerte der Kovarianzmatrix C in Gl. (2.67) sind. Da die QMC-Messungen nicht unabhängig voneinander sind, sind aufeinanderfolgende Messungen stets korreliert. Deshalb werden die Daten wie bereits bei der Fehlerberechnung in *Bins* aufgeteilt. Die Anzahl der Bins N_{Bins} ist so zu wählen, dass die Daten unkorreliert sind. Nun sind die statistischen Fehler in den Greenschen Funktionen noch korreliert. Vergleicht man eine Einzelmessung mit einem Mittel aus mehreren Messungen, kann man Abweichungen für einzelne τ -Punkte erkennen [109]. Die Korrelationen der Fehler werden durch die Kovarianzmatrix beschrieben

$$C_{lk} = \frac{1}{N_{\text{Bins}}(N_{\text{Bins}} - 1)} \sum_{j=1}^{N_{\text{Bins}}} \left(\langle \bar{G}_l \rangle - \bar{G}_l^j \right) \left(\langle \bar{G}_k \rangle - \bar{G}_k^j \right). \quad (2.67)$$

Es ist weiterhin zu beachten, dass schon sehr kleine statistische Fehler in \bar{G} einen großen Einfluss auf A haben können. Die dadurch entstehenden Störungen aus der Überanpassung von A an \bar{G} führen zu einem Rauschen, das größer sein kann als die Struktur in A [107].

Maximum-Entropie-Methode

Wie im vorangegangenen Abschnitt erläutert, lässt sich mithilfe der Methode der kleinsten Quadrate das vorhandene Rauschen nicht unterdrücken. Zur Regularisierung können vorab Informationen über das Spektrum genutzt werden. Diesen Ansatz verfolgt die Maximum-Entropie-Methode (MEM) [109]. Es wird ein *Default-Modell* $D(\omega)$ eingeführt, welches vorab Informationen über das Spektrum enthält. Im Allgemeinen wird eine sehr breite Gauß-Funktion dafür angenommen [93]. Das Spektrum und das Default-Modell werden über folgende Entropie

$$S[A] = \int d\omega \left[A(\omega) - D(\omega) - A(\omega) \ln \frac{A(\omega)}{D(\omega)} \right] \quad (2.68)$$

miteinander verbunden [110]. Wenn $A(\omega)$ und $D(\omega)$ die gleiche Norm \mathcal{N} besitzen, gilt

$$S[A] = - \int d\omega A(\omega) \ln \frac{A(\omega)}{D(\omega)}. \quad (2.69)$$

Sind $A(\omega)$ und $D(\omega)$ nicht-negativ, dann ist auch die Entropie S nicht-negativ und minimal für $A(\omega) = D(\omega)$. Die Einführung eines Regularisierungsparameter $\alpha > 0$ ergibt dann anstatt einer Minimierung von χ^2 eine Minimierung der Größe Q

$$Q[A] = \chi^2[A] - \alpha^{-1} S[A]. \quad (2.70)$$

Dieses Optimierungsproblem kann numerisch für festes α zum Finden des minimierenden Spektrums $A_\alpha(\omega)$ gelöst werden. Im Grenzfall für $\alpha \rightarrow 0$ dominiert der Entropie-Term. Das minimierende Spektrum ist dann genau das Default-Modell. Für $\alpha \rightarrow \infty$ dominiert das χ^2 . Damit ergeben sich die gleichen Problematiken, wie schon im vorangegangenen Abschnitt diskutiert. Der Parameter α interpoliert also zwischen dem Default-Modell und einem verrauschten Spektrum. Zur Eliminierung des Parameters α muss ein Kriterium gefunden werden, das den bestmöglichen Kompromiss zwischen Rauschen und Default-Modell erzeugt. Zum Finden eines solchen Kriteriums muss die MEM mithilfe der Bayesschen Statistik neu interpretiert werden.

Bayessche Statistik

Sei $P[A]$ die A-priori-Wahrscheinlichkeit des Spektrums $A(\omega)$. $P[A|\bar{G}]$ beschreibt die A-posteriori-Wahrscheinlichkeit von A bei gegebenen Eingabedaten \bar{G} und $P[\bar{G}|A]$ die Likelihood-Funktion. Der Satz von Bayes [111] verbindet diese Wahrscheinlichkeiten wie folgt

$$P[A|\bar{G}] = \frac{P[\bar{G}|A] P[A]}{P[\bar{G}]}. \quad (2.71)$$

Die Wahrscheinlichkeit $P[\bar{G}]$ wird Evidenz genannt und kann als Normierungsfaktor angegeben werden

$$P[\bar{G}] = \int \mathcal{D}A P[\bar{G}|A] P[A] \quad (2.72)$$

mit dem Integrationsmaß

$$\mathcal{D}A = \frac{d^N A}{\prod_i \sqrt{A_i}} . \quad (2.73)$$

Die Likelihood-Funktion lässt sich mithilfe des zentralen Grenzwertsatzes beschreiben [107]. Dies lässt sich an einem Beispiel veranschaulichen. Werden mit einem QMC-Algorithmus N_d Messungen von Greenschen Funktionen \bar{G} durchgeführt und läuft jede Messung komplett unabhängig von einander ab, dann ist für große N_d die Verteilung von \bar{G} eine Gauß-Funktion. Damit ergibt sich die Likelihood-Funktion zu

$$P[\bar{G}|A] = \frac{1}{Z_1} e^{-\chi^2} , \quad (2.74)$$

wobei χ^2 in Gl. (2.66) definiert ist. Der zugehörige Normierungsfaktor lässt sich explizit bestimmen (vgl. [109])

$$Z_1 = \int \prod_i dG_i e^{-\chi^2} = (2\pi)^{N/2} \det C , \quad (2.75)$$

wobei C die Kovarianzmatrix aus Gl. (2.67) ist. Die A-priori-Wahrscheinlichkeit hat nach [110] die Form

$$P[A] = \frac{1}{Z_2} e^{\alpha^{-1} S} . \quad (2.76)$$

Diese Wahrscheinlichkeit ist generell gültig für positive, additive Verteilungen A . Die Herleitung dieser generellen Verbindung zwischen Entropie und A-priori-Wahrscheinlichkeit basiert auf einem Gedankenexperiment von J. Skilling [110]. Die Normierung der A-priori-Wahrscheinlichkeit hat nach [109] die Form

$$Z_2 = \int \mathcal{D}A e^{\alpha^{-1} S} = (2\pi\alpha)^{N/2} . \quad (2.77)$$

Damit kann die A-posteriori-Wahrscheinlichkeit umgeschrieben werden zu

$$P[A|\bar{G}] = \frac{e^{-Q}}{Z_1 Z_2 P[\bar{G}]} . \quad (2.78)$$

Damit ist eine Neuinterpretation der Minimierung von Q als Maximierung der A-posteriori-Wahrscheinlichkeit $P[A|\bar{G}] \propto e^{-Q}$ möglich. $P[A|\bar{G}]$ gibt an, mit welcher Wahrscheinlichkeit ein Spektrum A zu den gegebenen Greenschen Funktionen \bar{G} passt. Damit produziert gerade das Maximum von $P[A|\bar{G}]$ das wahrscheinlichste Spektrum A bei gegebenem \bar{G} .

Bayessche Statistik und der Regularisierungsparameter

Zuvor wurde gezeigt, dass für die MEM anstatt einer Minimierung von Q eine Maximierung von $P[A|\bar{G}] \propto e^{-Q}$ möglich ist. Betrachtet man Q aus Gl. (2.70)

$$Q[A] = \chi^2[A] - \alpha^{-1}S[A], \quad (2.79)$$

ist eine Abhängigkeit vom Regularisierungsparameter α zu erkennen. Bis zum jetzigen Zeitpunkt wurde die Wahl von α nicht diskutiert. Zur Maximierung von $P[A|\bar{G}]$ ist es notwendig, α zu bestimmen. Deshalb wird im Folgenden der Regularisierungsparameter näher untersucht. Der Satz von Bayes aus Gl. (2.71) kann mit α umgeschrieben werden zu

$$P[A, \alpha|\bar{G}] = \frac{P[\bar{G}|A, \alpha]P[A, \alpha]}{P[\bar{G}]} . \quad (2.80)$$

Nutzt man den Satz von Bayes zum Faktorisieren von $P[A, \alpha]$ und integriert über A , dann kann die A-posteriori-Wahrscheinlichkeit $P[\alpha|\bar{G}]$ bestimmt werden zu

$$\begin{aligned} P[\alpha|\bar{G}] &= P[\alpha] \int \mathcal{D}A \frac{P[\bar{G}|A, \alpha]P[A, \alpha]}{P[\bar{G}]} \\ &= \frac{P[\alpha]}{Z_1 Z_2 P[\bar{G}]} \int \mathcal{D}A e^{-Q[A]} . \end{aligned} \quad (2.81)$$

Wie schon im vorangegangenen Abschnitt kann die Evidenz als Normierung der A-posteriori-Wahrscheinlichkeit beschrieben werden

$$P[\bar{G}] = \int d\alpha \frac{P[\alpha] \int \mathcal{D}A e^{-Q[A]}}{Z_1 Z_2} , \quad (2.82)$$

welche α -unabhängig ist. Alle Größen bis auf die A-priori-Wahrscheinlichkeit $P[\alpha]$ sind bekannt. Diese wird entweder als konstant oder als Jeffrey-Wahrscheinlichkeit $P[\alpha] \propto 1/\alpha$ [110, 112, 113] angenommen. Es stellte sich heraus, dass die Wahl von $P[\alpha]$ nur einen kleinen Einfluss auf das resultierende Spektrum hat [109].

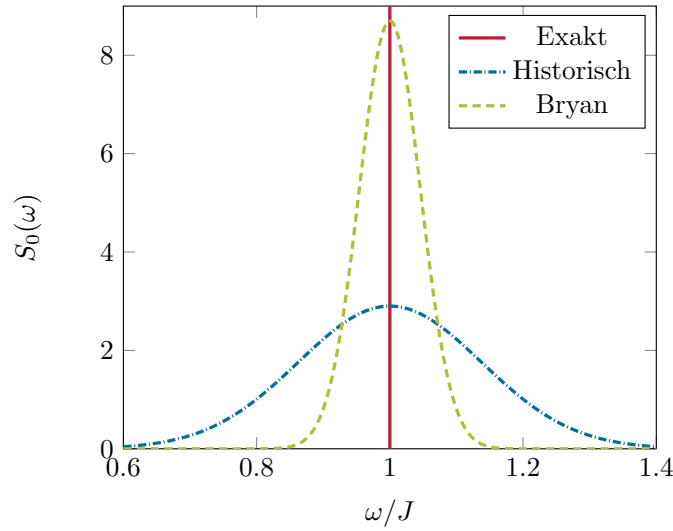


Abbildung 2.8.: Eine Dimer-Autokorrelationsfunktion im Vergleich mit der historischen und Bryan-MEM der resultierenden Spektren. Die exakte Lösung bei $T = 0$ ist eine δ -Funktion bei $\omega/J = 1$.

Wahlmöglichkeiten des Regularisierungsparameters

In diesem Abschnitt werden mögliche Methoden zur Bestimmung des passenden Regularisierungsparameters α vorgestellt. Diese Sammlung wird nicht vollständig sein und kann z. B. durch die klassische Lösung [107] erweitert werden.

Historische MEM

Damit das Spektrum mit den originalen imaginärzeitlichen Daten bis zur Standardabweichung übereinstimmt, wird in der historischen MEM

$$\chi^2[A_{\alpha^*}] = N_{\text{Bins}} \quad (2.83)$$

gewählt [114] .

Bryan-MEM

Im Gegensatz zu der historischen Lösung benutzt die Bryan-Methode kein festes α , sondern mittelt über einen Bereich [112]. Das resultierende, gemittelte Spektrum ergibt sich dann zu

$$\begin{aligned}
\langle A \rangle &= \int d\alpha \mathcal{D} A A P[A|\tilde{G}] P[\alpha|\tilde{G}] \\
&= \int_{\alpha_{\min}}^{\alpha_{\max}} d\alpha A_{\alpha} P[\alpha|\tilde{G}].
\end{aligned} \tag{2.84}$$

Ein Vergleich der Methoden ist in Abb. 2.8 gezeigt. Es ist eine Autokorrelationsfunktion $S_0(\omega)$ eines antiferromagnetischen Spin-1/2-Dimers. gezeigt bei der Temperatur $T/J = 0.25$. Dieses System kann mit einfachen Argumenten verstanden werden [93]. Bei hohen Temperaturen sehen sich die beiden benachbarten Spins und können einen thermisch getriebenen Random-Walk durchführen, was zu einer Intensität um $\omega = 0$ führt. Bei niedrigen Temperaturen wird die Nachbar-Wechselwirkung dominant und der Spin beginnt im Feld des Nachbarn zu präzedieren. Dies führt zu einer hohen Intensität der Autokorrelationsfunktion bei der Larmor-Frequenz $\omega/J = 1$.

Im Anschluss an die Diskussion der Wahl des Regularisierungsparameters α ist noch der Algorithmus zur Minimierung von Q in Gl. (2.70) von Interesse. Die Implementierung in dieser Arbeit basiert auf Vorarbeiten aus Ref. [93] und dementsprechend wurde dafür der Bryan-Algorithmus verwendet [115]. Dabei wird die Minimierung entlang des Gradienten bezüglich A durchgeführt. Eine ausführliche Beschreibung des Algorithmus und ein Vergleich zum Meshkov-Algorithmus [116] ist in Ref. [93] zu finden. Dort wurde gezeigt, dass der Bryan-Algorithmus die gleichen Ergebnisse schneller für hochaufgelöste Spektren liefert.

Quantenverhalten in Nanosystemen

Magnetische Moleküle mit unterschiedlichen intermolekularen Wechselwirkungen zeigen ein Verschmieren der Magnetisierung bei tiefen Temperaturen für zunehmende Wechselwirkung [117]. Außerdem gibt es ein breites Feld für Anwendungen magnetischer Partikel [118, 119] der Größe von ein paar nm bis zu mehreren μm in (bio-)medizinischer Diagnostik, Therapie und Bildgebung [120, 121]. Mit einem typischen Atomabstand von $a = 2.3 \text{ \AA}$ entspricht ein Würfel mit der Kantenlänge $L = 10$ einem Nanoteilchen der Größe 2.3 nm. Nanoteilchen sind nutzbar in einer Vielzahl an Forschungs- und Anwendungsbereichen, wie z. B. in der Magnetpartikelbildgebung (MPI)¹ [122, 123].

Die Untersuchung von magnetischen Eigenschaften der magnetischen Moleküle ist ein quantenmechanisches Vielteilchenproblem, auch wenn man nur den Spin-Hamiltonoperator betrachtet. Die exakte Diagonalisierung des Spin-1/2-Hamiltonoperators kann numerisch für einen Würfel mit der Kantenlänge $L = 2$ bzw. $N = L^3 = 8$ Spins durchgeführt werden [124, 125]. Für größere Systeme mit der Kantenlänge $L = 4$ bzw. $N = 64$ Spins ist auch unter Ausnutzung der Symmetrien keine exakte Diagonalisierung möglich. Für nicht-frustrierte Spinsysteme erlaubt die QMC-Methode die Untersuchung der Thermodynamik für Systeme mit einer Kantenlänge von $\sim \mathcal{O}(10)$ [88, 92, 104].

Gliederung

Das bekannte Paradebeispiel eines Quantenmagneten in drei Dimensionen, der **antiferromagnetische Heisenberg Spin-1/2 Würfel**, wird in diesem Kapitel als endliches System betrachtet. Die Beschränkung auf dieses Modell kann schon für verschiedene Kantenlängen den Übergang vom klassischen zu Quantenverhalten zeigen. Hierbei werden die thermodynamischen Größen mit QMC ausgewertet und diskutiert. Außerdem werden die Ergebnisse mit Resultaten aus der linearen Spinwellentheorie in Abschnitt 3.1.1 verglichen. Zuerst wird danach in Abschnitt 3.1.2 die Thermodynamik ohne Magnetfeld

¹engl. *magnetic particle imaging*

besprochen, um dann im Anschluss in Abschnitt 3.1.3 die Thermodynamik bei Magnetfeldern bis zur Sättigungsmagnetisierung zu untersuchen. Die Magnetisierungskurven weisen bei tiefen Temperaturen Stufen auf, die für größere Kantenlänge verschwinden. Die kleinsten untersuchten Würfel der Kantenlänge $L = 2$ zeigen typischerweise Quantenverhalten und können mittels ED exakt beschrieben werden. Für die größten untersuchten Würfel der Kantenlänge $L = 10$ werden die klassischen Eigenschaften des Systems gezeigt und der Übergang vom Quanten- zu klassischem Verhalten diskutiert und analysiert.

3.1 Antiferromagnetischer Spin-1/2-Heisenberg-Würfel

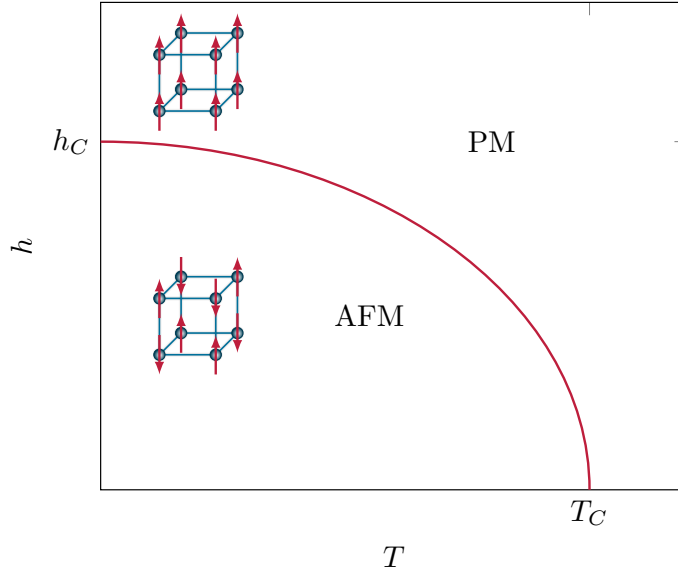


Abbildung 3.1.: Eine Skizze des klassischen Phasendiagramms eines dreidimensionalen Antiferromagneten im thermodynamischen Limes mit der antiferromagnetischen und paramagnetischen Phase. Die durchgezogene Linie zeigt einen Phasenübergang zweiter Ordnung.

Der dreidimensionale isotrope Antiferromagnet mit $d = 3$ wird auf dem primitiven kubischen Gitter (sc)² untersucht. Das System mit $N = L^3$ Spins-1/2 wird durch den Hamiltonoperator

$$H = J \sum_{\langle ij \rangle} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + h \sum_i S_i^z \quad (3.1)$$

beschrieben, wobei h das Magnetfeld und $J > 0$ die antiferromagnetische Austauschwechselwirkung ist, diese ist für das folgende Kapitel festgehalten, d. h. $J = 1$. In diesem Kapitel wird sich auf Kantenlängen $L = 2, 4, \dots, 10$ mit einer geraden Anzahl an Spins und periodischen Randbedingungen beschränkt, um Frustration zu vermeiden. Das Phasendiagramm des Antiferromagneten im thermodynamischen Limes ist bekannt und in Abb. 3.1 dargestellt [126–130]. Die einzige Phasenlinie trennt die **paramagnetische** (PM) Phase von der **antiferromagnetischen** (AFM) Phase. Ohne Magnetfeld $h = 0$ und im thermodynamischen Limes $L \rightarrow \infty$ ist der Phasenübergang bei der kritischen Temperatur $T_C \simeq 0.946$ [131]. Für ein endliches Magnetfeld verschiebt sich der Phasenübergang zu einer kleineren Temperatur. Oberhalb des Sättigungsfeldes $h_c = 2JSz$

²engl. *simple cubic*

[132], ist das System vollständig polarisiert und in der paramagnetischen Phase, wobei $z = 2d$ die Anzahl der nächsten Nachbarn bzw. die Koordinationszahl ist. Im thermodynamischen Limes $N \rightarrow \infty$ hat das System eine langreichweitige Ordnung und einen divergierenden Peak in der spezifischen Wärme bei der kritischen Temperatur T_C . In diesem Kapitel wird untersucht, wie lange das Verhalten aus dem thermodynamischen Limes bestehen bleibt, wenn das System endliche Kantenlängen hat. Dazu wird zunächst die lineare Spinwellentheorie auf endlichen Gitter beschrieben.

3.1.1. Lineare Spinwellentheorie

In diesem Abschnitt wird die lineare Spinwellentheorie für einen hyperkubischen d -dimensionalen Antiferromagneten skizziert, welche bereits ausführlich in der Literatur für unendliche Systemgrößen $N \rightarrow \infty$ [132–134] und endliche Systemgrößen [135, 136] diskutiert wurde.

Erstens wird die Holstein-Primakoff-Transformation genutzt und der Antiferromagnet auf zwei Untergittern A und B dargestellt [58]. Zweitens werden Terme bis zur Ordnung $1/S$ berücksichtigt. Da das Modell translationsinvariant ist, wird drittens eine Fourier-Transformation durchgeführt. Abschließend hat der Hamiltonoperator unter Berücksichtigung der Terme bis zu $\mathcal{O}(1/S)$ folgende Form analog zu Ref. [136]

$$H = 2SzJ \sum_{\mathbf{q}} \left[\gamma_{\mathbf{q}} (a_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{q}} + a_{\mathbf{q}}^{\dagger} b_{\mathbf{q}}^{\dagger}) + a_{\mathbf{q}}^{\dagger} a_{\mathbf{q}} + b_{\mathbf{q}}^{\dagger} b_{\mathbf{q}} \right] + \text{const.} \quad (3.2)$$

und mit dem Einheitsvektor \mathbf{e}_{α} in α -Richtung ist

$$\gamma_{\mathbf{q}} = \frac{1}{d} \sum_{\alpha=1}^d \cos \mathbf{q} \cdot \mathbf{e}_{\alpha}. \quad (3.3)$$

Die Symmetrie der Untergitter wird erhalten unter der Bedingung, dass die gesamte gestagerte Magnetisierung verschwindet

$$\sum_{i \in A} S_i^z - \sum_{j \in B} S_j^z = 0 \quad \text{bzw.} \quad (3.4)$$

$$\frac{1}{N_A} \sum_{\mathbf{q}} (a_{\mathbf{q}}^{\dagger} a_{\mathbf{q}} + b_{\mathbf{q}}^{\dagger} b_{\mathbf{q}}) = 2S. \quad (3.5)$$

Die Bedingung kann durch eine Einführung des Langrange-Multiplikators λ erzwungen werden

$$H' = H - \lambda \sum_{\mathbf{q}} (a_{\mathbf{q}}^{\dagger} a_{\mathbf{q}} + b_{\mathbf{q}}^{\dagger} b_{\mathbf{q}}), \quad (3.6)$$

wobei λ aus der Gl. (3.5) bestimmt wird. H' wird mittels der Bogoljubov-Transformation [137, 138] diagonalisiert und man erhält

$$H' = \sum_{\mathbf{q}} \epsilon_{\mathbf{q}} (c_{1\mathbf{q}}^{\dagger} c_{1\mathbf{q}} + c_{2\mathbf{q}}^{\dagger} c_{2\mathbf{q}}) + \text{const.} \quad (3.7)$$

$$\epsilon_{\mathbf{q}} = \frac{zJS}{\eta} \sqrt{1 - \eta^2 \gamma_{\mathbf{q}}^2} \quad (3.8)$$

mit $\eta = 1/(1 + 2SzJ\lambda)$, das aus der Bedingung

$$\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} \frac{1}{\sqrt{1 - \eta^2 \gamma_{\mathbf{q}}^2}} = 2S + 1 \quad (3.9)$$

berechnet werden muss. Diese Bedingung stellt sicher, dass $\eta < 1$ für endliche Gitter ist und damit kein Pol bei $\mathbf{q} = (0, 0, 0)$ und (π, π, π) existiert. In $d = 3$ ist die Summe endlich und kleiner als zwei für $N \rightarrow \infty$. Für $N \rightarrow \infty$ ist die Bedingung durch $\eta \rightarrow 1$ erfüllt. Für ein endliches N ist η von eins um $\mathcal{O}(1/N^2)$ verschieden. Der Parameter η führt eine Spinlücke im Spektrum für endliche Systeme ein.

Aus diesen Gleichungen lassen sich relevante thermodynamische Größen zum Vergleich mit QMC-Ergebnissen ableiten. Die **Grundzustandsenergie** lässt sich damit berechnen mit [133]

$$E_0 = -dJS^2 \left(1 + \frac{\sum_{\mathbf{q}} \left(1 - \sqrt{1 - \eta^2 \gamma_{\mathbf{q}}^2} \right)}{NS} \right)^2, \quad (3.10)$$

die dazugehörigen Werte sind in der Tabelle 3.2 gezeigt. Außerdem kann die **Magnetisierung** im thermodynamischen Limes bei $T = 0$ durch Ableitung der Grundzustandsenergie unter Berücksichtigung eines Magnetfeldes berechnet werden [134]

$$M/M_S = \frac{h}{h_c} \left[1 - \frac{1}{2SN} \sum_{\mathbf{q}} \gamma_{\mathbf{q}} \sqrt{\frac{1 + \gamma_{\mathbf{q}}}{1 - \cos(2\theta) \gamma_{\mathbf{q}}}} \right], \quad (3.11)$$

wobei für den Winkel θ gilt $\sin \theta = h/h_c$.

L	E_0/N		η
	LSWT	QMC	
4	-0.915224	-0.9149(6)	0.999446
6	-0.905221	-0.9048(5)	0.999945
8	-0.903581	-0.9029(4)	0.99999
10	-0.903131	-0.9026(2)	0.999997
∞	-0.902837	-0.9023	1

 Tabelle 3.2.: Grundzustandsenergie E_0 und η für verschiedene Systemgrößen

3.1.2. Thermodynamik ohne Magnetfeld

In diesem Abschnitt ist das Magnetfeld $h = 0$ ausgeschaltet. In Abb. 3.3 sind die resultierenden thermodynamischen Größen der QMC dargestellt. Nur für kleine Systeme mit $L = 2$ konnten ED-Berechnungen durchgeführt werden und diese stimmen mit den Ergebnissen der QMC überein.

Die thermodynamischen Größen zeigen für Systemgrößen $L > 2$ ein sehr ähnliches Verhalten, nur um die kritische Temperatur T_C und für $T \rightarrow 0$ in der Suszeptibilität erkennt man systemgrößenabhängige Unterschiede. Der Grund, dass der Würfel der Größe $L=2$ so stark abweicht, liegt an starken Finite-Size-Effekten, wie z. B. den periodischen Randbedingungen. Periodische Randbedingungen führen in einer Raumrichtung mit $L=2$ -Spins zu einer effektiven Austauschwechselwirkung $J^*=2J$ bzw. ist die Anzahl der unterscheidbaren nächsten Nachbarn halbiert $z^*=z/2$. Hier wurden deshalb die periodischen Randbedingungen für $L=2$ entfernt.

In Abbildung 3.3(a) ist zu erkennen, dass die **Energie** pro Platz E/N im Grenzfall $T \rightarrow 0$ auf einen konstanten Wert konvergiert, der als Grundzustandsenergie verstanden werden kann und in guter Näherung mit dem Resultat der linearen Spinwellentheorie in Gl. (3.10) übereinstimmt. Außerdem sagt die chirale Störungstheorie einen Zusammenhang der Energie mit der Systemgröße und Dimension voraus [139]

$$E_0(L) - E_0 \propto \frac{1}{L^{d+1}}. \quad (3.12)$$

Wie in Abbildung 3.3(b) und in der obigen Gleichung beschrieben, stimmt der lineare Verlauf der Grundzustandsenergie über L^{-d-1} mit den QMC-Ergebnissen überein. Der Fit wurde mit dem Parameter $E_0/N = -0.9023$ ausgeführt. Die LSWT-Ergebnisse aus der Tabelle 3.2 passen sehr gut mit den QMC-Ergebnissen zusammen.

Die **spezifische Wärme** C hat für alle Systemgrößen einen Peak, welcher im thermodynamischen Limes $L \rightarrow \infty$ den Phasenübergang bei der kritischen Temperatur zeigt. In Ref. [131] wurden mittels QMC-Simulationen die kritische Temperatur zu

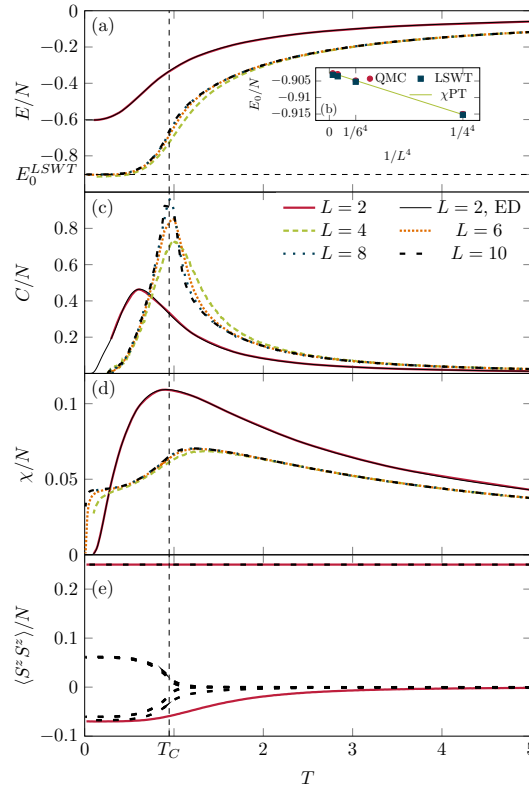


Abbildung 3.3.: (a) Die Energie pro Platz, (c) die spezifische Wärme, (d) die Suszeptibilität und (e) die Korrelationen sind für verschiedene Systemgrößen $L = 2, 4, 6, 8$ und 10 über der Temperatur aus der QMC und für $L = 2$ aus der ED gezeigt. Die gestrichelte vertikale Linie zeigt die kritische Temperatur T_C ohne Magnetfeld $h = 0$ im thermodynamischen Limes. Inset (b) zeigt entsprechend der chiralen Störungstheorie (χ PT) die Grundzustandsenergie pro Platz aus der QMC über $1/L^{d+1}$.

dem Wert $T_C = 0.946$ extrapoliert. Die Resultate in Abb. 3.3(c) zeigen ein Wandern der kritischen Temperatur zu kleineren Temperaturen für steigende Systemgrößen. Für $L = 10$ stimmt die erwartete kritische Temperatur mit den QMC-Resultaten überein.

Die **Suszeptibilität** χ ist in Abb. 3.3(d) gezeigt. Im Hochtemperaturbereich $T \gg T_C$ ist das Curie-Verhalten zu erkennen. Um die kritische Temperatur $T \simeq T_C$ erreicht die Suszeptibilität ihr Maximum und fällt dann monoton für kleinere Temperaturen. Im Niedrigtemperaturbereich $T \rightarrow 0$ fällt die Suszeptibilität stark ab.

Die **Spin-Spin-Korrelationen** $\langle S_i^z S_j^z \rangle$ für $L = 2$ und 10 sind in Abb. 3.3(e) dargestellt, wobei i und j Plätze auf dem Gitter sind. Die obere konstante Korrelation ist $\langle S_i^z S_i^z \rangle = S^2 = 1/4$. Im Fall $L = 2$ existiert nur ein temperaturabhängiger Zweig, der für $T \gg T_C$ ein paramagnetisches Verhalten $\langle S_i^z S_j^z \rangle = 0$ zeigt und für $T \rightarrow 0$ abfällt.

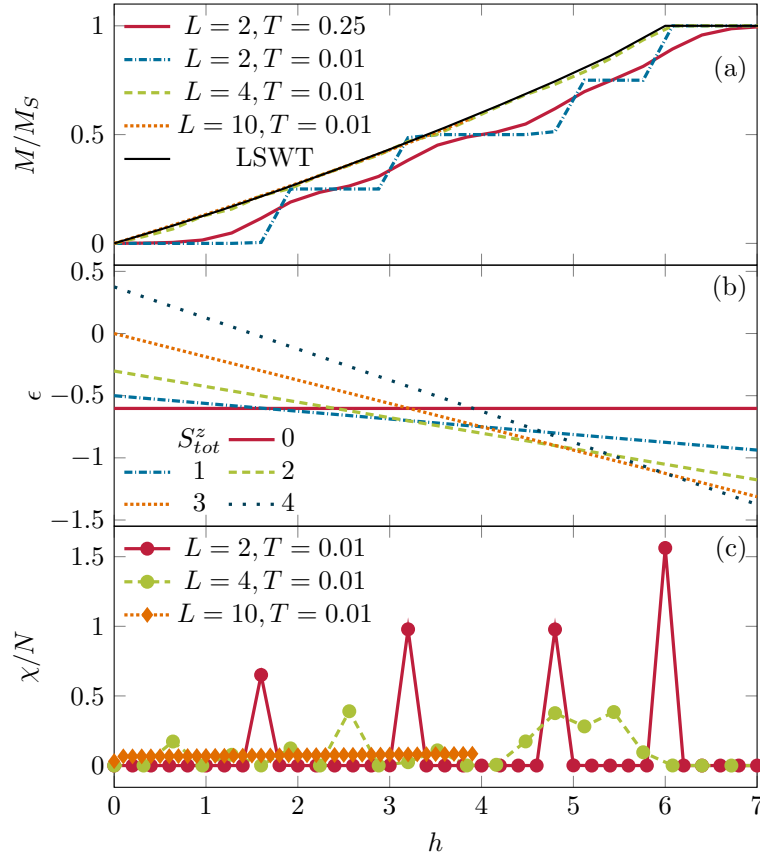


Abbildung 3.4.: (a) Die Magnetisierung aus QMC und LSWT aus Gl. (3.11), (b) die Energieniveaus für verschiedene S_{tot}^z für $L = 2$ aus ED und (c) die Suszeptibilität aus QMC sind für verschiedene Systemgrößen und Temperaturen über dem Magnetfeld dargestellt.

Für $L > 2$ sind die Korrelationen sehr ähnlich und deshalb ist zur besseren Sichtbarkeit nur $L = 10$ gezeigt. Hier erkennt man für $T \gg T_C$ das paramagnetische Verhalten, jedoch wird dieses schneller als im $L=2$ -Fall erreicht. Für $T < T_C$ teilen sich die Zweige auf, welches durch eine quasi-langreichweitige Ordnung in der antiferromagnetischen Phase verstanden werden kann. Diese Erkenntnisse passen sehr gut zu den Erwartungen, die im Phasendiagramm in Abb. 3.1 diskutiert wurden.

3.1.3. Thermodynamik im Magnetfeld

Im Folgenden werden die Veränderungen der thermodynamischen Eigenschaften durch ein externes Magnetfeld $h \geq 0$ untersucht. Das Hauptaugenmerk liegt auf der Magnetisierungskurve, da diese ein gutes Verständnis liefert, wie die Cluster magnetisch gekoppelt

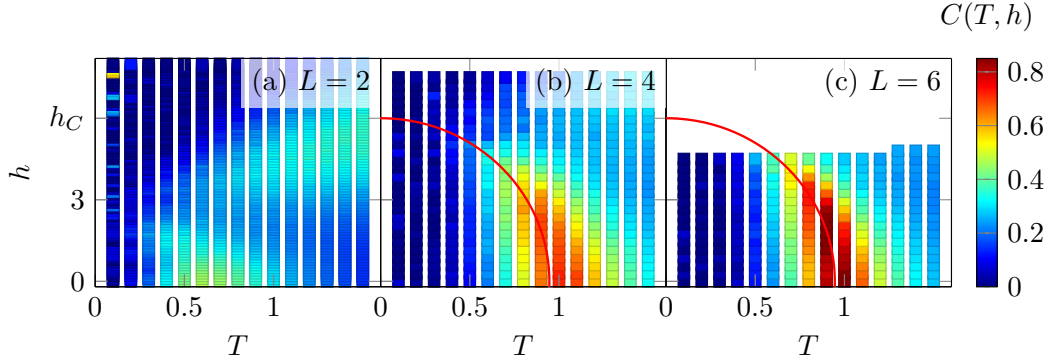


Abbildung 3.5.: Die spezifische Wärme aus QMC ist als Konturplot über der Temperatur und dem Magnetfeld für verschiedene Systemgrößen (a) $L = 2$, (b) $L = 4$ und (c) $L = 6$ dargestellt. Die rote Linie in Panel (b) und (c) zeigt den zu erwartenden Phasenübergang aus dem Phasendiagramm in Abb. 3.1.

sind [140]. Die Magnetisierung kann klare Anzeichen für Quantenverhalten haben, wie z. B. Magnetisierungsstufen.

Die **Magnetisierung** M/M_S in Abbildung 3.4(a) ist auf die Sättigungsmagnetisierung $M_S = NS$ normiert. Für $L = 2$ und tiefe Temperaturen $T = 0.01$ weist die Magnetisierung klare Stufen auf, die bei höheren Temperaturen verwischt werden. Die Magnetisierungsstufen sind anhand von Übergängen der Energieniveaus des Grundzustands zu verstehen, vgl. Abb. 3.4(b). Da der Gesamtspin $S_{\text{tot}}^z = 0, 1, \dots, NS$ mit dem Magnetfeld koppelt, können die Energieniveaus $\epsilon(S_{\text{tot}}^z, h = 0)$ in jedem Unterraum $S_{\text{tot}}^z \in \{0, 1, \dots, NS\}$ innerhalb der ED für $L = 2$ berechnet werden [141]

$$\epsilon(S_{\text{tot}}^z, h) = \epsilon(S_{\text{tot}}^z, 0) - hS_{\text{tot}}^z. \quad (3.13)$$

Außerdem kann die Magnetisierung im thermodynamischen Limes aus der linearen Spinwellentheorie und der Gl. (3.11) bis zur Sättigungsmagnetisierung M_S berechnet werden. Wie in Abbildung 3.4(a) zu erkennen, stimmt diese Kurve sehr gut mit den erhaltenen QMC-Resultaten der $L = 10$ Würfel überein. Für Systeme $L > 2$ oder höhere Temperaturen, aber $T \ll T_C$, verschwinden die Magnetisierungsstufen.

Im Fall $L = 4$ können die Magnetisierungsstufen im Intervall $[0, h_c]$ nicht mehr so gut aufgelöst werden, da aufgrund der Wechsel der Energieniveaus NS Stufen auftreten müssten. Um trotzdem eine Änderung in der Magnetisierung zu erkennen, ist die **Suszeptibilität** in Abbildung 3.4(c) dargestellt. Die Suszeptibilität ist auch als Ableitung der Magnetisierung nach dem Magnetfeld und somit als Änderung zu verstehen. Die hier gezeigte Suszeptibilität ist direkt in der QMC, wie in Abschnitt 2.3.3 definiert, berechnet. Die

Singularitäten für kleine Systemgrößen sind direkt mit den Magnetisierungsstufen verbunden und zeigen auch für kleine Temperaturen $T = 0.01$ und $L = 4$ ein Anzeichen für Magnetisierungsstufen. Für größere Systeme kann man eine lineare Steigung der Suszeptibilität ausmachen. Der Fall $L = 10$ zeigt keine Quantisierung mehr und kann deshalb als Antiferromagnet im klassischen Limes verstanden werden.

Auf das in Abb. 3.1 diskutierte Phasendiagramm zurückkommend ist hier die spezifische Wärme als Konturplot über dem Magnetfeld und der Temperatur für verschiedene Systemgrößen gezeigt. In Abbildung 3.5 sind diese Konturplots gezeigt. Der Fall $L = 2$ zeigt, wie auch schon vorher, ein etwas anderes Verhalten, da hier die Peaks in der spezifischen Wärme nicht mit dem Sättigungsfeld kombinierbar sind. In den anderen Fällen für $L > 2$ kann man entlang des Peaks ausgehend von $h = 0$ durch Folgen der maximalen Intensität einen Verlauf des Phasendiagramms zu h_C bei $T = 0$ ausmachen.

3.1.4. Zusammenfassung

Zusammenfassend wurden die statischen Eigenschaften des endlichen Spin-1/2-Heisenberg-Würfels mit externem Magnetfeld für verschiedene Systemgrößen untersucht. Kleine Systeme mit der Kantenlänge $L = 2$ zeigen quantenmechanische Eigenschaften, wie z. B. Stufen in der Magnetisierung. Diese Quanteneigenschaften wurden für größere Systeme oder höhere Temperaturen fragil. Bereits in Systemen der Kantenlänge $L \geq 6$, d. h. einer echten Länge von 1.4 nm, verschwindet die Quantisierung und das Modell kann durch das klassische Nanoverhalten beschrieben werden.

Spindynamik von Heisenberg-Ketten

Antiferromagnetische Spin- S Ketten (AFC)¹ mit homogenen nächsten-Nachbar-Wechselwirkungen (NN) lassen sich in zwei Arten aufteilen. Einerseits haben die Systeme mit halbzahligem Spin $S = (2N_0 + 1)/2$ keine Lücke und andererseits haben die Systeme mit ganzzahligem Spin $S = N$ eine Lücke [34]. Beide Varianten haben einen nicht-entarteten Singulett-Grundzustand und unterscheiden sich in ihren Korrelationsfunktionen, d. h. algebraisch im System ohne Lücke oder exponentiell im System mit Lücke. Außerdem sind die $S=1$ Haldane-Ketten grundlegend verschieden von $S=1/2$ AFCs, da die Haldane-Ketten einen endlichen String-Ordnungsparameter besitzen [36, 142]. Dies übersetzt sich in einen symmetriegeschützten topologischen Grundzustand der Haldane-Kette und die Existenz von Randzuständen in Systemen mit offenen Randbedingungen, die in der AKLT-Darstellung des Grundzustandes auftreten [35].

Schon früh wurden die inhomogenen $S=1/2$ -Ketten auf potenzielle Ähnlichkeiten mit Haldane-Ketten untersucht. Insbesondere alternierende $S=1/2$ antiferro-antiferro- und ferro-antiferromagnetische Ketten (AAC und FAC) wurden intensiv untersucht. Erste ED-Berechnungen der spezifischen Wärme und der magnetischen Suszeptibilität der FAC wurden in der Ref. [143] durchgeführt. Mithilfe der DMRG wurde das Quantenphasendiagramm der antiferro-antiferro- und ferro-antiferromagnetischen Ketten ermittelt, welche ein Verhalten ähnlich der Haldane-Kette zeigen [144]. Das Quantenphasendiagramm stimmt mit ED-Berechnungen des String-Order-Parameters überein [145] und ein Magnetfeld-induzierter Übergang in eine Luttinger-Flüssigkeit in der FAC konnte bestätigt werden [146]. Die Anregungsspektren und die dynamische Strukturfaktorberechnungen für die FAC wurden bei $T=0$ mithilfe von ED auf endlichen Systemen mit bis zu 26 Plätzen [144, 147, 148] und mit einer Molekularfeldtheorie in der Darstellung der Bondoperatoren [148, 149] berechnet. Es wurden bei endlichen Temperaturen Untersuchungen der spezifischen Wärme, der Suszeptibilität und der Magnetisierung der FAC mit QMC [150, 151] durchgeführt, dabei wurde die Spinlücke mit [150] und ohne [151] Kopplungen zwischen den Ketten analysiert.

¹engl. *antiferromagnetic chain*

Die Synthetisierung und Untersuchung von realen Materialien ist eine große Herausforderung. Haldane-Ketten wurden in Verbindungen auf Ni^{2+} -Basis [152–164] gefunden und tragen zum besseren Verständnis dieser Modelle bei. Bei ersten Materialversuchen der Spin-1/2-FACs [165, 166] wurde quasi-eindimensionales Verhalten durch Kopplung zwischen den Ketten, induziert durch magnetische langreichweitige Ordnungen bei hohen Temperaturen, beschrieben. Die Analysen der Verbindungen CuNb_2O_6 [167, 168], DMACuCl_3 [169–171], $\text{Na}_3\text{Cu}_2\text{SbO}_6$ [172–174], des Zink-Verdazyl-Komplex $\text{C}_{29}\text{H}_{18}\text{F}_{12}\text{N}_5\text{O}_4\text{Zn}$ [150] und $\text{BaCu}_2\text{V}_2\text{O}_8$ [175] zeigten Verhalten, wie es in FAC und möglicherweise auch Haldane-Ketten zu erwarten ist. Zur Diskussion wurden dabei thermodynamische Messungen der Magnetisierung und der magnetischen Suszeptibilität sowie Resultate der Kernspinresonanz und unelastischen Neutronenstreuung herangezogen.

Gliederung

Zuerst wird in Abschnitt 4.1 die **Spin-1/2 Heisenberg-Kette mit alternierendem ferro- und antiferromagnetischem** Austausch diskutiert. Dabei liegt der Schwerpunkt auf der Rolle der Austauschkopplungen, um die Grenzfälle von der dimerisierten zur Haldane-Kette zu untersuchen. Hierbei wird die Kombination aus Störungstheorie und QMC-Simulationen genutzt, um Ergebnisse der Spinlücke mithilfe der magnetischen Suszeptibilität in Abschnitt 4.1.1 sowie des dynamischen Strukturfaktors in Abschnitt 4.1.2 über einen weiten Bereich von Kopplungskonstanten und für verschiedene Temperaturen zu erhalten. Für eine kleine ferromagnetische Kopplung gibt es eine gute Übereinstimmung von Störungstheorie und QMC. Für beliebige Austauschkopplungen wird gezeigt, dass der transversale dynamische Strukturfaktor aus der QMC von Triplo-nen in ein Haldane-Ketten-Spektrum übergeht. Die Spindynamik bei endlichen Temperaturen wird hier näher diskutiert. Schließlich werden in Abschnitt 4.1.3 die Ergebnisse für die Spinlücke in Abhängigkeit der Austauschkopplungen mit vorhandener Literatur verglichen.

Danach wird in Abschnitt 4.2 die Spindynamik der **anisotropen antiferromagnetischen Spin-1 Heisenberg-Kette** diskutiert. Das Modell wird für zwei verschiedene Anisotropien betrachtet und damit in der Haldane- und Néel-Phase untersucht. In Abschnitt 4.2.1 wird der longitudinale dynamische Strukturfaktor im Hochtemperaturbereich diskutiert. Außerdem werden die QMC-Ergebnisse mit DQT-Ergebnissen verglichen.

4.1 Alternierende ferro-antiferromagnetische Spin-1/2-Kette

Dieser Abschnitt basiert auf zwei Vorveröffentlichungen:

[R2] N. Casper, W. Brenig, arXiv:2001.04696.

[R5] N. Casper, Bachelorarbeit, Technische Universität Braunschweig, 2014.



Abbildung 4.1.: Alternierende ferro-antiferromagnetische Heisenberg Spin-1/2 Kette

Der Hamiltonoperator der Spin-1/2 FAC, vgl. Abb. 4.1, lautet

$$H = \sum_{i=0}^{N/2-1} (J_F \mathbf{S}_{2i} \cdot \mathbf{S}_{2i+1} + J_{AF} \mathbf{S}_{2i+1} \cdot \mathbf{S}_{2i+2}) - h \sum_{i=0}^{N-1} S_i^z, \quad (4.1)$$

wobei $\mathbf{S}_i = (S_i^x, S_i^y, S_i^z)$ die $S=1/2$ -Operatoren am Platz i der Kette mit $N/2$ -Einheitszellen mit periodischen Randbedingungen sind. Die ferro- und antiferromagnetischen Austauschkopplungen sind gekennzeichnet durch $J_F < 0$ und $J_{AF} > 0$. Nachfolgend wird der dimensionslose Parameter $j = |J_F/J_{AF}|$ verwendet. h bezieht sich auf ein externes Magnetfeld. Mit $N = 4N$ ist das System frustrationsfrei.

Im Grenzfall $j = 0$ besteht die Kette aus $N/2$ entkoppelten antiferromagnetischen Dimeren mit einem einfach entarteten Singulett-Produkt-Grundzustand und einer Energielücke von $\Delta = J_{AF}$ zu einem $3N/2$ -fach entarteten Satz von angeregten Triplet-Zuständen. Für $j \neq 0$, aber immer noch $j \ll 1$, spalten sich die Triplet-Zustände in ein Gas mit dispersiven und wechselwirkenden Triplon-Anregungen auf. Im entgegengesetzten Grenzfall, d. h. $1/j = 0$, besteht das System aus $N/2$ entkoppelten ferromagnetischen Dimeren in Triplet-Zuständen mit einem $3^{N/2}$ -fachen entarteten Grundzustand und einer Energielücke von $\Delta = J_F$ zu einem $N/2$ -fachen entarteten Satz aus angeregten Singulett-Zuständen. Für $1/j \neq 0$, jedoch weiterhin $1/j \ll 1$, wird die Grundzustandsentartung angehoben und die Kopplung der Dimere führt zu der Haldane-Kette, welche eine effektive niederenergetische antiferromagnetische Spin-1-Kette ist [34]. Die Spinlücke von $\Delta_H/J \simeq 0.41050(2)$ wurde für die Haldane-Kette mithilfe der ED [176], der QMC [177] und der DMRG [37] berechnet, wobei J die Austauschkopplungskonstante ist. Das letztere J kann mit J_{AF} der FAC im asymptotischen Fall $1/j \rightarrow 0$ identifiziert werden, wobei $J_{AF} \neq 0$ gilt. Daher wird auch eine Lücke von $\Delta/J_{AF} \simeq 0.41$ für die FAC erwartet [151]. Allerdings werden die Bond-Korrelationsfunktionen am antiferromagnetischen Bond, d. h. $\langle \mathbf{S}_{2i+1} \cdot \mathbf{S}_{2i+2} \rangle$, um den Faktor 4 reduziert, wenn man diese mit den Bond-Korrelationsfunktionen einer fiktiven Haldane-Kette [178] mit Spin $L = 1$, d. h.

	$S = 1$	$S = 1/2$
Singulett E_0	$-2J_{\text{AF}}$	$-1/4(1 - 2j + 2\sqrt{1 + 2j + 4j^2})$
Triplet E_1	$-J_{\text{AF}}$	$-1/4(1 + 2\sqrt{1 + j^2})$
Spinlücke $\Delta = E_1 - E_0$	J_{AF}	$\lim_{j \rightarrow \infty} \Delta = J_{\text{AF}}/4$

 Tabelle 4.2.: Spektren von $N = 2$, $S = 1$ Dimer und $N = 4$, $S = 1/2$ FAC

$\langle \mathbf{L}_i \cdot \mathbf{L}_{i+1} \rangle = 4\langle \mathbf{S}_{2i+1} \cdot \mathbf{S}_{2i+2} \rangle$, vergleicht. Deshalb wird eine Skalierung der Spinlücke um den Faktor $1/4$ erwartet.

Die Reduzierung der Spinlücke wird auf zwei Arten hervorgehoben. Erstens werden in Tabelle 4.2 die Spektren zweier Modelle, nämlich eines $S = 1$ AFM-Dimers und einer FAC der Länge $N = 4$, beide mit offenen Randbedingungen, verglichen. Die Spinlücke ist als Differenz der Energien zwischen dem niedrigsten Triplet- und Singulett-Zustand definiert. Daraus ist eine Verringerung der Lücke um $1/4$ zu erkennen. Zweitens ist in Abb. 4.3(a) die Spinlücke für verschiedene Systemgrößen N unter Verwendung der Lanczos Sparse-Matrix-Diagonalisierung aus dem ALPS-Projekt [179] gezeigt. Bereits für diese sehr kurzen Ketten ($N = 12 \dots 28$) erhält man aus einem linearen Fit der Spinlücke über $1/N^2$ die reduzierte Spinlücke $\Delta/J_{\text{AF}} \simeq 0.1025 = 0.41/4$.

4.1.1. Magnetische Suszeptibilität

In diesem Abschnitt wird die magnetische Suszeptibilität in Abhängigkeit der Austauschkopplungen und der Temperatur diskutiert. Dazu werden Ergebnisse mithilfe der Störungstheorie (PT)² und QMC miteinander verglichen.

Störungstheorie

Im Grenzfall $j \ll 1$ kann man die Kopplung zwischen den antiferromagnetischen Dimeren als Störung ansehen. In Anlehnung an die Ref. [180] wird eine Entwicklung bis zur Ordnung $\mathcal{O}(j)$ durchgeführt. Damit wird dieses Problem zu einem Tight-Binding-Modell für ein Gas nicht wechselwirkender Triplets mit nächstem-Nachbar-Hüpfen entlang der Kette. Die Triplonen haben folgende Dispersion

$$\epsilon_q = J_{\text{AF}} - \frac{J_{\text{F}}}{2} \cos(qa) = \Delta - \frac{J_{\text{F}}}{2} (1 + \cos(qa)) , \quad (4.2)$$

wobei die Länge der Einheitszelle auf $a \equiv 2$ gesetzt ist. $\Delta = \epsilon_{\pi/a} = J_{\text{AF}} + \frac{J_{\text{F}}}{2}$ ist die Lücke. Die freie Energie f des Triplon-Gases ist gegeben durch [181]

²engl. *perturbation theory*

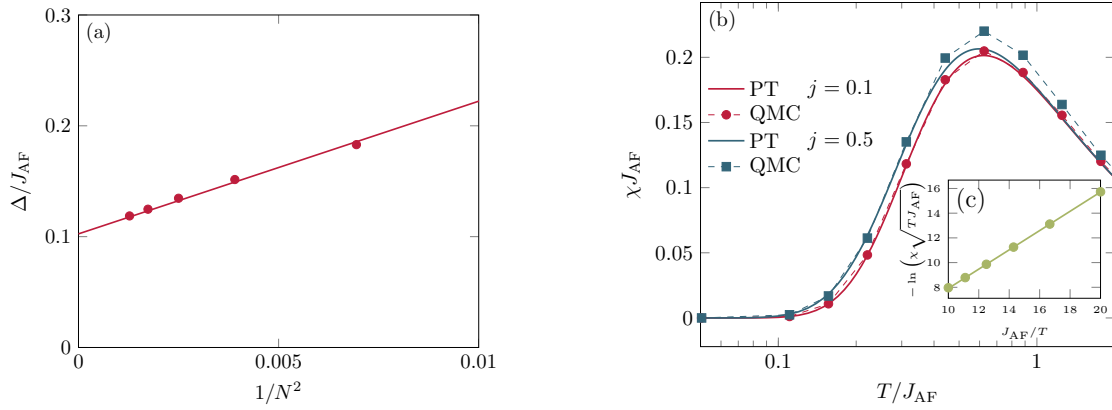


Abbildung 4.3.: (a) Finite-Size-Skalierung der Spinlücke (Punkte) mithilfe der Lanczos Sparse-Matrix-Diagonalisierung [179] für $N = 12 \dots 28$ und $j = 100$. Die Gerade ist ein Fit $\Delta(N) = \Delta_0 + a/N^2$ mit $\Delta_0 = 0.1025 = 0.41/4$ und $a = 11.9706$. (b) Die temperaturabhängige Suszeptibilität für $j=0.1$ und 0.5 aus der PT (durchgezogene Linien) und der QMC (gestrichelte Linien mit Punkte). Bei der QMC ist der Fehler kleiner als die Symbolgröße. (c) Der typische Fit von Gl. (4.7) (Linie) an die QMC-Ergebnisse (Symbole) im Tieftemperaturbereich für $j = 2$ ist gezeigt, wobei die Lücke Δ aus der Steigung extrahiert werden kann.

$$f = -\frac{1}{2\beta} \ln \left\{ 1 + [1 + 2 \cosh(\beta h)] \sum_q e^{-\beta \epsilon_q} \right\}. \quad (4.3)$$

Die Impulssumme $z(\beta) = \sum_q e^{-\beta \epsilon_q}$ liefert folgendes Ergebnis

$$z(\beta) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\pi}^{\pi} dq e^{-\beta \epsilon_q} = e^{\beta J_{AF}} I_0 \left(\frac{\beta J_F}{2} \right) \quad (4.4)$$

mit der modifizierten Bessel-Funktion der 1. Art [182]

$$I_0(x) = \sum_n \frac{x^{2n}}{(2^n n!)^2}. \quad (4.5)$$

Damit kann die Suszeptibilität berechnet werden

$$\chi(T) = -\frac{\partial^2 f}{\partial h^2} \Big|_{h=0} = \beta \frac{z(\beta)}{1 + 3z(\beta)}. \quad (4.6)$$

Spinlücke aus QMC

Mit der QMC wird die Suszeptibilität im Tieftemperaturbereich ermittelt. Dann kann bei tiefen Temperaturen die Energielücke zwischen dem Grundzustand und dem ersten angeregten Zustand wie in Ref. [183] extrahiert werden

$$\chi(T) \propto \sqrt{\beta} e^{-\beta\Delta}. \quad (4.7)$$

Diese Formel entspricht auch gleichzeitig dem asymptotischen Verhalten der modifizierten Bessel-Funktion für große Argumente in Gl. (4.6) [182].

Die Abb. 4.3(b) zeigt $\chi(T)$ für tiefe und mittlere Temperaturbereiche und für kleine und mittlere Austauschkopplungen $j = 0.1$ und 0.5 . Wie man erkennen kann, stimmen PT und QMC für $T/J_{\text{AF}} \ll 1$ und für beide j -Werte gut überein. Bis zu $j = 0.5$ und bei mittleren T/J_{AF} kann ein $\sim 10\%$ Unterschied im Maximum beobachtet werden. Aufgrund der guten Übereinstimmung bei tiefen Temperaturen ist das Fitten der QMC-Resultate mit Gl. (4.7) gerechtfertigt. Außerdem zeigen die Suszeptibilitäten der PT und der QMC für $T/J_{\text{AF}} \gg 1$ beide Curie-Verhalten, wobei $\chi(T) = C_c/T$ mit der Curie-Konstanten $C_c = S(S+1)/3 = 1/4$ pro Spin-1/2 gilt.

4.1.2. Dynamischer Strukturfaktor

In diesem Abschnitt werden die QMC-Ergebnisse des dynamischen Strukturfaktors beschrieben. Da das Modell zwei Spins pro Einheitszelle umfasst, wird ein gerader (ungerader) Strukturfaktor $S_{\text{even}(\text{odd})}(q, \omega)$ durch Summierung über die geraden (ungeraden) Plätze $i = 2l$ ($i = 2l + 1$) in Gl. (2.59) einschließlich der On-Site-/Bond-Korrelatoren unabhängig voneinander analytisch fortgesetzt

$$S_{\text{even}(\text{odd})}(q, \tau) = \frac{1}{N} \sum_{i=2l(+1), j} e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)} \left\langle S_i^+(\tau) S_j^-(0) \right\rangle. \quad (4.8)$$

In Abb. 4.4 werden Konturplots von $S_{\text{even/odd}}(q, \omega)$ für verschiedene j und für die feste Temperatur $T = 0.25$ gezeigt. Außerdem sind Konturplots der dynamischen Strukturfaktoren $S_{\text{even/odd}}(q, \omega)$ für verschiedene Temperaturen und festes $j = 10$ in Abb. 4.5 dargestellt. Im Folgenden werden die Abbildungen diskutiert.

Zuerst ist eine Veränderung des dispersiven Verhaltens zu erkennen. Bei $j = 0$ ist die Spinlücke unabhängig vom Impuls q , welches das Spektrum eines exakten antiferromagnetischen Dimer-Produktzustands zeigt. Dieses wird durch eine Delta-Funktion bei der Singulett-Triplett-Lücke $\omega = J_{\text{AF}}$ beschrieben. Mit steigendem j , jedoch weiterhin im Gültigkeitsbereich der Störungstheorie, wird ein Kosinus-Band der dispersiven Triplets in $S_{\text{even/odd}}(q, \omega)$ erwartet. Abb. 4.4(a)-(f) zeigt, dass der Schwerpunkt des Spektrums

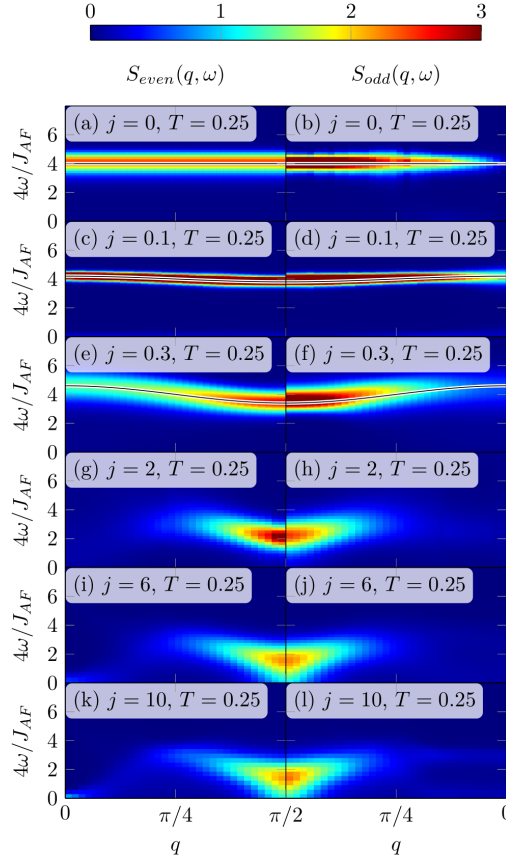


Abbildung 4.4.: Konturplot des dynamischen Strukturfaktors $S_{\text{even/odd}}(q, \omega)$ für verschiedene $j = 0, 0.3, 2, 10$ und für die Temperatur $T/J_{\text{AF}}=0.25$ einer FAC mit $N = 128$ Plätzen. Die durchgezogene Linie in Plot (a)-(f) ist aus der Störungstheorie, vgl. Gl. (4.2). Die Farbskalierung der Intensität (oberer Balken) ist identisch in allen Plots.

sehr gut mit Gl. (4.2) übereinstimmt. Abschließend wird j weiter erhöht und das System bewegt sich in einen korrelierten Zustand mit einer kleinen aber endlichen Lücke, wobei die Intensität am Rand der Brillouin-Zone maximal ist. Es ist zu beobachten, dass die Erhöhung für j größer als $j^* \sim \mathcal{O}(10)$ nur einen kleinen Effekt auf die Größe der Spinlücke hat. Deshalb kann der Bereich $j > j^*$ als effektive Haldane-Kette interpretiert werden.

Die Abb. 4.4 zeigt eine schrittweise Umverteilung des spektralen Gewichts für S_{even} mit steigendem j . Beginnend bei $j \ll 1$ ist das spektrale Gewicht über die ganze Brillouin-Zone verteilt und für $j \gg 1$ verschiebt sich das spektrale Gewicht zum Zonenrand. Diese Tatsache basiert auf der Erhöhung der antiferromagnetischen Spin-Korrelationslänge ξ mit j , wenn man sich dem Haldane-Grenzfall nähert. Für $j = 0$ sind die antiferromagnetischen Korrelationen nur auf einzelnen Dimeren verteilt, wobei im Haldane-Grenzfall $\xi \simeq 6$ in Bezug auf die $S=1$ -Plätze, hier die ferromagnetischen Dimere, gilt [37]. Die

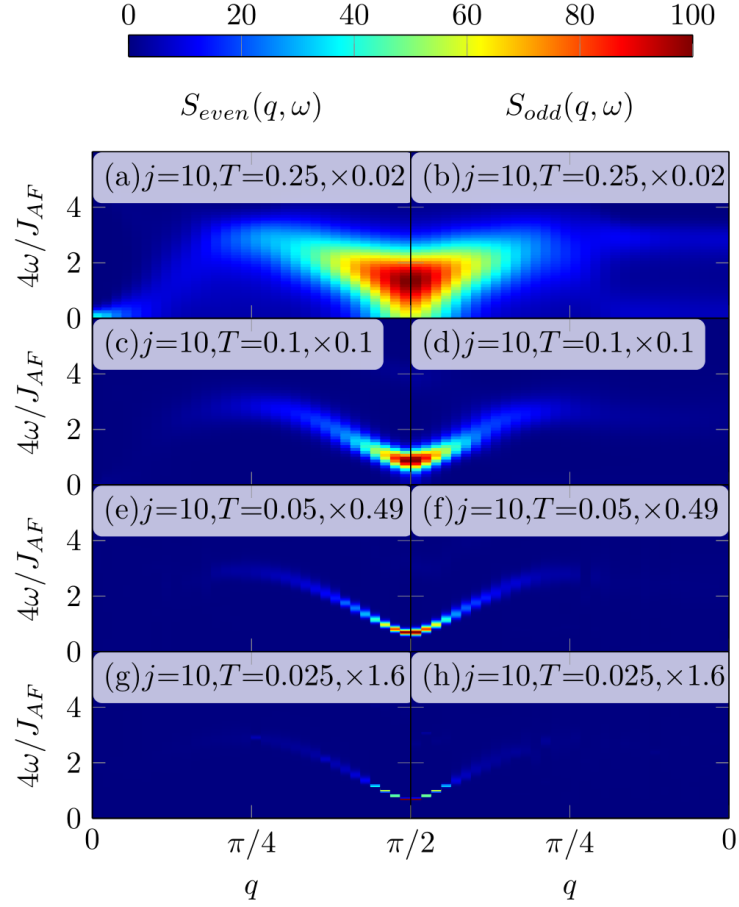


Abbildung 4.5.: Konturplot des dynamischen Strukturfaktors $S_{even/odd}(q, \omega)$ für verschiedene $T = 0.25, 0.1, 0.05, 0.025$ und $j = 10$ für eine FAC mit $N = 128$ Plätze. Die Farbskalierung der Intensität (oberer Balken) ist mit einem angegebenen Faktor in jedem Plot multipliziert.

Erhöhung von ξ kann in einen statischen Strukturfaktor $S_q \sim \int_0^\infty d\omega S(q, \omega)$ übersetzt werden, wobei sich dieser von einer impulsunabhängigen Funktion bei $j = 0$ zu einer Funktion mit einer Erhöhung der Intensität bei $q \rightarrow \pi/2$ im Grenzfall $j \rightarrow \infty$ verändert. Dies entspricht der beobachteten Intensitätsmodulation in $S_{even}(q, \omega)$. Es gibt nur einen kleinen Unterschied zwischen $S_{even/odd}(k, \omega)$ in der Intensitätsmodulation entlang q für größere $j \geq 2$. Das spektrale Gewicht ist bereits in S_{odd} für $j \ll 1$ am Zonenrand lokalisiert. Wie in Gl. (4.8) beschrieben, sind die On-Site-/Bond-Korrelatoren inkludiert und führen zu einem Unterschied in den Spektren für $j = 0, 0.3$.

In Abb. 4.5 ist eine thermische Verbreiterung der Spektren bei steigender Temperatur zu beobachten. Die Spektren für $T < 0.1$ sind sehr scharf. Diese zeigen eine klare Lücke für $j = 10$ und haben eine große Ähnlichkeit zu Spektren der Haldane-Kette bei $T = 0$ [37, 93, 184–186]. Wird $T/J_{AF} \rightarrow 0.25$ erhöht und hält j fest, werden die Spektren

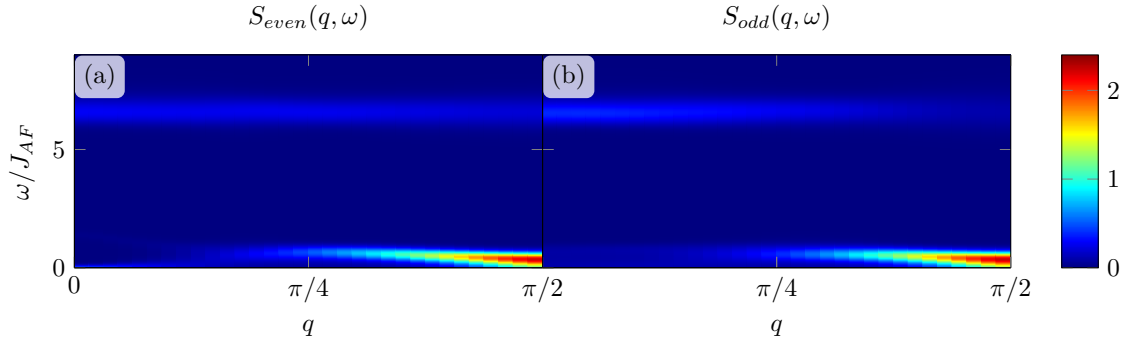


Abbildung 4.6.: Konturplot des dynamischen Strukturfaktors $S_{even/odd}(q, \omega)$ über das ganze Spektrum von $\omega = 0$ bis $\omega \gg j$ für $T=0.25$ und $j = 6$ für eine FAC mit $N = 128$ Plätze.

verbreitert und die Lücke schließt sich. Auch hier sind die Ähnlichkeiten zu den Spektren der Haldane-Kette bei endlichen Temperaturen sehr groß [93, 186, R3], wie auch in Abb. 4.9(a) und (c) der isotropen Haldane-Kette bei $T \rightarrow \infty$ bzw. $T_{\text{eff}} = 1/4$ zu erkennen ist. Die effektiven Temperaturen der beiden Systeme unterscheiden sich wie schon die Spinlücken um den Faktor $1/4$.

Oberhalb der gezeigten ω -Achse in den Abb. 4.4 und 4.5 ist ein weiteres Band beim ferromagnetischen Dimer $\omega = j$ mit kleiner Intensität. Nur für $j \geq 2$ ist dieses flache Band von dem dispersiven Band getrennt, wie in Abb. 4.6 für $j = 6$ gezeigt. In der MEM muss daher das gesamte Spektrum mit einem großen ω -Bereich berücksichtigt werden.

Für die dynamische QMC ist die Spinlücke als die Energie $\omega_{\text{max}}/J_{\text{AF}}$ beim Maximum von $S(q = \pi/2, \omega)$ für $T \rightarrow 0$ gegeben. In Abb. 4.7(a) ist $S(\pi/2, \omega)$ gezeigt. Die historische und Bryan-Lösung für die tiefste Temperatur $T = 0.025$ zeigen die gleiche Maximumposition. Wenn die Temperatur verringert wird, wird der Peak von $S(\pi/2, \omega)$ schärfer und das Maximum wandert zum kleineren ω . Ähnlich der Tieftemperaturentwicklung des nichtlinearen σ -Modells folgt die Peakposition der Gleichung [187]

$$\omega_{\text{max}}(T) = \Delta_0 + A\sqrt{\Delta_0 T} e^{-\frac{\Delta_0}{T}}, \quad (4.9)$$

wobei $A = \sqrt{3/4}$ so gewählt ist, dass die QMC-Ergebnisse mit der obigen Gleichung übereinstimmen. Der Verlauf der Peak-Position für verschiedene Temperaturen und j ist in Abb. 4.7(b) gezeigt.

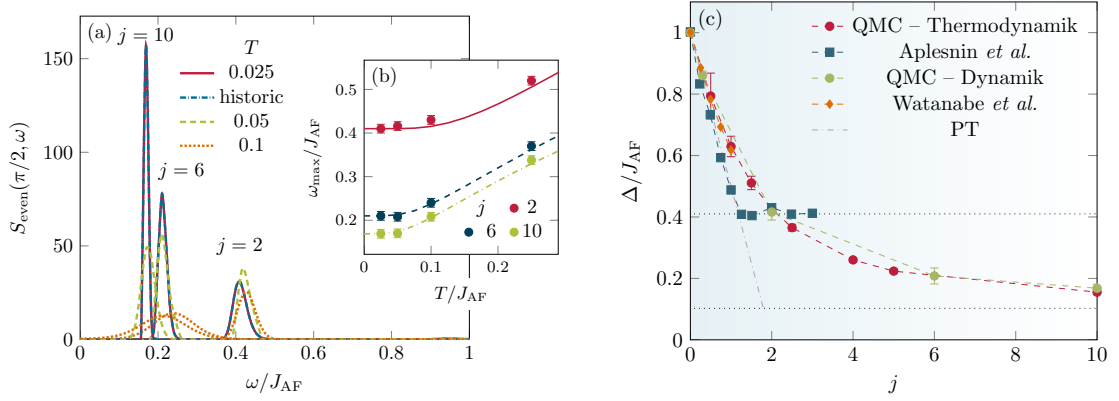


Abbildung 4.7.: (a) Der dynamische Strukturfaktor $S_{\text{even}}(\pi/2, \omega)$ ist für verschiedene $j = 2, 6, 10$ und verschiedene Temperaturen $T = 0.1, 0.05, 0.025$ gezeigt. Die historische Lösung innerhalb der MEM ist für die tiefste Temperatur $T = 0.025$ berechnet. (b) Die Frequenz der maximalen Intensität des dynamischen Strukturfaktors bei dem größten Wellenvektor ist für verschiedene $j = 2, 6, 10$ über der Temperatur dargestellt. Die Linien sind proportional zur Tieftemperaturentwicklung des nichtlinearen σ -Modells in Gl. (4.9) [187]. (c) Die Spinlücke versus j wurde mit verschiedenen Methoden berechnet: Störungstheorie, thermodynamische und dynamische QMC. Die gestrichelten horizontalen Linien sind die konventionelle Haldane-Lücke ≈ 0.41 und ein Viertel davon. Der Fehler der dynamischen QMC entspricht der Halbwertsbreite.

4.1.3. Verlauf der Lücke

In diesem Abschnitt werden die erhaltenen Spinlücken in Abhängigkeit von j zusammengefasst. In Abb. 4.7(c) werden die Spinlücken Δ/J_{AF} gezeigt, welche durch die Störungstheorie, die thermodynamische und dynamische QMC berechnet wurden. Außerdem sind Ergebnisse aus der Literatur mithilfe von QMC-Simulationen bei S. S. Aplesnin und G. A. Petrakovskii [151] und mithilfe von DMRG-Simulationen bei S. Watanabe and H. Yokoyama [144] zum Vergleich dargestellt.

Erstens ist erkennbar, dass für $j \lesssim 1$ alle Methoden in einer Spinlücke der gleichen Größenordnung resultieren, welche mit steigendem j sinkt. Zweitens liefert die Störungstheorie für $j \gtrsim 1$ kleinere Spinlücken. Drittens zeigen die thermodynamische und dynamische QMC beide den gleichen Trend der Spinlücken, d. h. sie konvergieren auf einen Wert, der klar kleiner als die Spin-1 Haldane-Spinlücke Δ_H ist. Für Δ aus den QMC-Simulationen kann deshalb angenommen werden, dass die Spinlücke auf den Wert $\Delta(j \rightarrow \infty) = \Delta_H/4$ konvergiert.

Im Vergleich zur Ref. [151], in der die Spinlücke auch durch einen Fit der $\chi(T)$ mithilfe der QMC-Methode bestimmt wurde, zeigen die Verläufe eine Ähnlichkeit im Bereich $\Delta \geq \Delta_H$ bzw. $j \lesssim 1$. Für größere j fällt die Spinlücke konstant auf den Wert von Δ_H . Diese Abweichung besteht nicht nur mit den hier ermittelten Ergebnissen, sondern

auch mit der Ref. [178]. Der Grund dieses Unterschieds ist bis jetzt nicht ermittelbar.

4.1.4. Zusammenfassung

Zusammenfassend wurden die statischen und dynamischen Eigenschaften der alternierenden ferro-antiferromagnetischen Spin-1/2-Kette bei endlichen Temperaturen untersucht. Es konnte ein Übergang von ungekoppelten Dimeren zu einem Haldane-Ketten-Verhalten über j ohne einen dazwischenliegenden quantenkritischen Punkt gefunden werden. Die Störungstheorie für ein dispersives Triplon-Gas stimmt bis zu $j \lesssim 1$ gut mit der thermodynamischen und dynamischen QMC überein. Für $j \gtrsim 10$ kann das Verhalten der Haldane-Kette mit einer endlichen Spinlücke bestätigt werden, die um den Faktor 4 zur normalen Haldane-Lücke reduziert ist. Wegen dieser Reduktion beginnt der Hochtemperaturbereich bereits bei $T/J_{\text{AF}} \gtrsim 0.25$, da sich dort die Lücke komplett füllt.

4.2 Anisotrope antiferromagnetische Spin-1 XXZ-Kette

Dieser Abschnitt basiert auf einer Vorveröffentlichung:

[R3] J. Richter, N. Casper, W. Brenig, R. Steinigeweg,
Phys. Rev. B **100**, 144423 (2019).

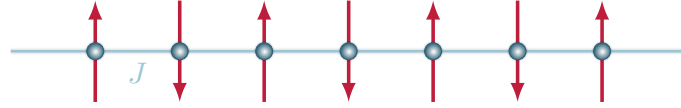


Abbildung 4.8.: Antiferromagnetische Spin-1-Kette

Der Hamiltonoperator der antiferromagnetischen ($J > 0$) Spin-1 XXZ-Kette der Länge N , vgl. Abb. 4.8, hat die folgende Form

$$\mathcal{H} = J \sum_{i=1}^N \left[\frac{1}{2} (S_i^+ S_{i+1}^- + S_i^- S_{i+1}^+) + \Delta S_i^z S_{i+1}^z \right], \quad (4.10)$$

wobei Δ die Anisotropie ist. Der isotrope Fall $\Delta = 1$ wird auch isotrope Haldane-Kette genannt und wurde bereits als Grenzfall im vorangegangenen Abschnitt 4.1 beschrieben. Dieses Modell geht für $\Delta > 1$ in eine Néel-Phase über [188]. Im Folgenden wird der dynamische Strukturfaktor $S(q, \omega)$ für zwei unterschiedliche Anisotropien $\Delta = 1, 1.5$ näher untersucht und mit Ergebnissen der dynamischen Quanten-Typikalität (DQT)³ verglichen.

Neben dem dynamischen Strukturfaktor $S(q, \omega)$ wurde in Ref. [R3] die Autokorrelationsfunktion $S_{i,i}(t)$, der intermediäre Strukturfaktor $S(q, t)$ und ein ungeordnetes System $\mathcal{H} + \sum_i h_i S_i^z$ mit einem zufälligen Magnetfeld $h_i \in [-W, W]$ mit der Unordnung $W \geq 0$ untersucht, welche hier jedoch nicht genauer untersucht werden. Diese Publikation basiert auf Ergebnissen der ED und der DQT von J. Richter und R. Steinigeweg, und der QMC mit der vorgestellten Methode in Kapitel 2. Der Schwerpunkt der Publikation lag auf der Untersuchung des Spintransports der Spin-1-Kette, deshalb soll im Folgenden ein kurzer Überblick dazu gegeben werden. Im Gegensatz zur vergleichbaren Spin-1/2-Kette ist der Hamiltonoperator in Gl. (4.10) für $S = 1$ nicht integrabel [189]. Auch wenn der Fokus auf der Spin-1-Kette liegt, wird die bekannte Spindynamik der integrablen $S = 1/2$ -Kette von Gl. (4.10) kurz zusammenfasst. Einerseits hat für $\Delta < 1$ die Spin-1/2-Kette ein endliches Drude-Gewicht, d. h. der Transport ist ballistisch [190–192]. Andererseits verschwindet für $\Delta > 1$ das Drude-Gewicht und klare Anzeichen von Diffusion konnten beobachtet werden [193–198]. Obwohl die Situation für $\Delta = 1$ nicht vollständig geklärt ist, haben vergangene Arbeiten die Präsenz von Superdiffusion am isotropen Punkt bei

³engl. *dynamical quantum typicality*

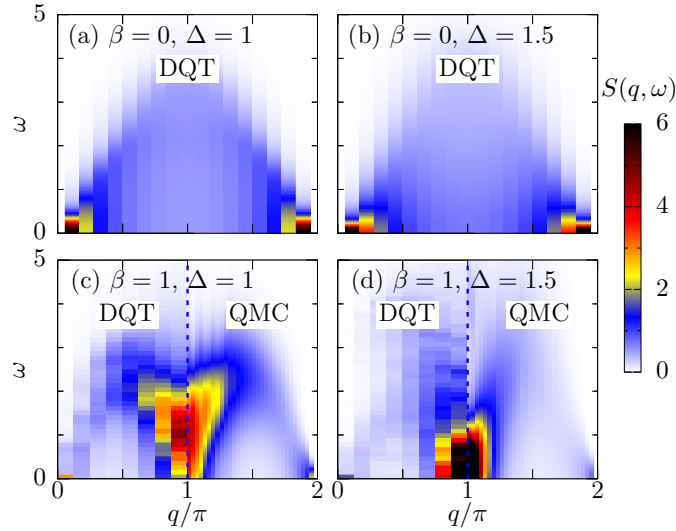


Abbildung 4.9.: (a), (b) Longitudinaler DSSF $S(q, \omega)$ bei unendlicher Temperatur $\beta = 0$ für $\Delta = 1, 1.5$ mit DQT für Systemgröße $N = 18$. (c), (d) Longitudinaler DSSF $S(q, \omega)$ bei $\beta = 1$. DQT ($N_S = 50$ gemittelte Simulationen) für $L = 16$ und $q < \pi$ verglichen mit QMC für $N = 64$ bei $q > \pi$.

©Urheberrechtlich geschützte Abbildung mit Genehmigung durch die American Physical Society angepasst von Ref. [R3].

hohen Temperaturen befürwortet [198–200]. Das Hauptergebnis der Ref. [R3] ist die Beobachtung eines diffusiven Spintransport für $\Delta = 1.5$. Dieses Ergebnis basiert dabei auf der Beobachtung einer Gaußschen Verbreiterung der Korrelationen, einer zeitunabhängigen Diffusionskonstante, eines Potenzgesetz-Verhaltens der Autokorrelationsfunktion, der Beobachtung der exponentiell abfallenden, langwelligen Moden und eine Beschreibung des dynamischen Strukturfaktors durch eine Lorentz-Kurve. Im Gegensatz dazu sind diese Charakteristiken für das isotrope System $\Delta = 1$ nicht so stark ausgeprägt oder ganz verschwunden. Dies könnte trotz der Nicht-Integrabilität der Spin-1-Kette auf superdiffusiven Transport hindeuten, was konsistent mit den Ergebnissen aus Ref. [201] ist. In vorangegangenen Untersuchungen mithilfe von QMC-Simulationen wurde der hydrodynamische Grenzfall der antiferromagnetischen anisotropen Spin-1/2 Heisenberg-Kette mit [202] und ohne Magnetfeld [203] näher untersucht.

4.2.1. Dynamischer Strukturfaktor

In diesem Abschnitt werden Ergebnisse der QMC des longitudinalen dynamischen Strukturfaktors $S(q, \omega)$ nach Gl. (2.59) mit Ergebnissen der DQT verglichen. In Abb. 4.9 sind Konturplots des dynamischen Strukturfaktors $S(q, \omega)$ für alle vier Kombinationen von $\beta = 0, 1$ und $\Delta = 1, 1.5$ gezeigt. Einerseits sind die Ergebnisse für $\beta = 0$ in Abb. 4.9 (a)-(b) mit der DQT für Ketten der Länge $N = 18$ berechnet. Hier zeigt $S(q, \omega)$ ein breites

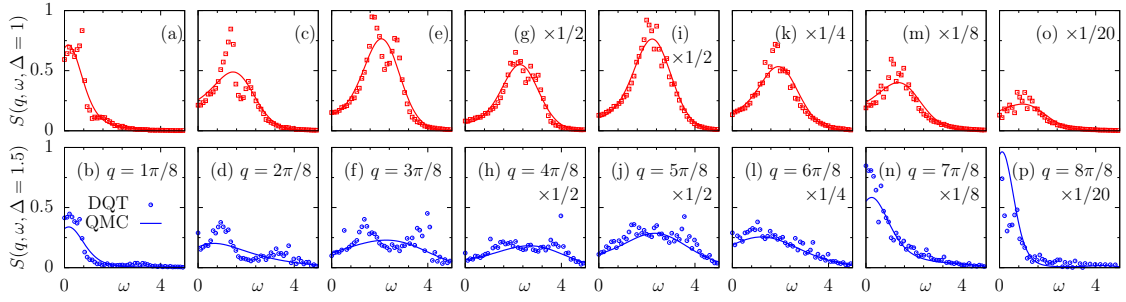


Abbildung 4.10.: Longitudinaler DSSF $S(q, \omega)$ bei endlicher Temperatur $\beta = 1$ für verschiedene Impulse q , für $\Delta = 1$ (oben) und $\Delta = 1.5$ (unten). DQT (Symbole) und QMC (Kurven) für $N = 16$. Daten in (g) - (p) für bessere Sichtbarkeit skaliert.

©Urheberrechtlich geschützte Abbildung mit Genehmigung durch die American Physical Society angepasst von Ref. [R3].

Anregungskontinuum im Zentrum der Brillouin-Zone bis zu $\omega \lesssim 5$. Daneben sind diffusive Pole für kleine Wellenvektoren $q \rightarrow 0$ zu erkennen. Andererseits werden Konturplots für $\beta = 1$ in den Abb. 4.9 (c)-(d) zwischen QMC-Ergebnissen für $N = 64$ und DQT-Ergebnissen für kleinere Systeme mit $N = 16$ verglichen. Es ist zu erkennen, dass die tiefere Temperatur zu einer Umverteilung des spektralen Gewichts führt. Die Intensität ist bei $q = \pi$ erhöht, wobei dies für $\Delta = 1.5$ stärker ausgeprägt ist. Dazu ist das spektrale Gewicht der Pole beim Wellenvektor $q \rightarrow 0$ für $\beta = 1$ reduziert. Trotz der großen Differenz der Systemgrößen ist die Übereinstimmung zwischen QMC und DQT gegeben. Eine ausführlichere Diskussion der Spektren $S(q, \omega)$ bei $\Delta = 1$ und kleineren Temperaturen $T \ll J$ wurde in den Ref. [93, 204] durchgeführt. Die Abb. 4.9(c) zeigt das Haldane-Spektrum bei hohen Temperaturen, welches auch schon in Abb. 4.5(a)-(b) diskutiert wurde und damit gut übereinstimmt.

Um den Unterschied zwischen der QMC und DQT bzw. $\Delta = 1$ und $\Delta = 1.5$ näher zu beleuchten, sind in Abb. 4.10 (a)-(p) q -Schnitte von $S(q, \omega)$ bei $\beta = 1$ für verschiedene Wellenvektoren q gezeigt. Hier sind die Ergebnisse der QMC und DQT für die gleichen Systemgrößen $N = 16$ miteinander verglichen. Alle gezeigten Kombinationen von q und Δ zeigen eine gute Übereinstimmung von QMC und DQT. Während die Daten der DQT aufgrund der endlichen Kettenlänge verrauscht sind, zeigen die QMC-Ergebnisse einen sehr glatten Verlauf. Möglicherweise kann die Doppel-Peak-Struktur in den Abb. 4.10 (c)-(h) mit der QMC aufgrund der analytischen Fortsetzung nicht aufgelöst werden, was bereits in der Ref. [204] diskutiert wurde.

Für den kleinsten endlichen Wellenvektor $q = \pi/8$ in Abb. 4.10 (a)-(b) verhält sich $S(q, \omega)$ für $\Delta = 1$ und 1.5 qualitativ ähnlich. In beiden Fällen hat $S(q, \omega)$ einen Pol bei $\omega \approx 0$. Jedoch scheint das Maximum von $S(q, \omega)$ zu endlichen Frequenzen $\omega > 0$ verschoben zu sein, was ein Finite-Size-Effekt sein könnte. Außerdem ist für Wellenvektoren $q \approx \pi/2$ in den Abb. 4.10 (e)-(j) eine deutliche Anregung im isotropen Fall zu erkennen, wobei für $\Delta = 1.5$ $S(q, \omega)$ sehr flach ist. Weiterhin weist $S(q, \omega)$ für $\Delta = 1.5$

in Abb. 4.10 (o)-(p) ein großes spektrales Gewicht bei $q = \pi$, also einen deutlichen Peak um $\omega \approx 0$, auf. Dies ist konsistent mit der zu erwartenden Néel-Phase für $\Delta = 1.5$ bei tiefen Temperaturen T [188].

4.2.2. Zusammenfassung

Zusammenfassend wurde der dynamische Strukturfaktor des eindimensionalen $S=1$ XXZ-Modells für verschiedene Anisotropien und Temperaturen untersucht. Für tiefe Temperaturen konnte eine gute Übereinstimmung der QMC- und DQT-Ergebnisse gezeigt werden. Der dynamische Strukturfaktor zeigt einen Phasenübergang von der Haldane-Phase für $\Delta = 1$ in eine Néel-Phase für $\Delta = 1.5$ bei tiefen Temperaturen.

Quantenphasen in planaren XY-Systemen mit Ringaustausch

In diesem Kapitel werden die Resultate von planaren XY-Systemen mit Ringaustausch auf verschiedenen Gittern präsentiert. Die Ergebnisse auf den verschiedenen Gittern sind sehr unterschiedlich, deshalb werden die Erwartungen und bisherigen Erkenntnisse am Ende der Einleitung für die einzelnen Gittertypen separat gegeben. Trotzdem wird hier ein kleiner Überblick gegeben, um auf die Modelle, die interessanten Quantenphasen und die Ergebnisse vorzubereiten. Wie bereits in der Potenzreihe in Gl. (1.1) erwähnt, ist bei nicht verschwindenden t/U der quadrilineare Term, also der Ringaustausch, relevant. Dazu soll der folgende Hamiltonoperator aus Gl. (1.2) für $\Delta = h = 0$ betrachtet werden

$$\mathcal{H} = -\frac{1}{2} \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \left(S_i^+ S_j^- + h.c. \right) - \sum_{ijkl} K_{ijkl} \underbrace{\left(S_i^+ S_j^- S_k^+ S_l^- + h.c. \right)}_{P_{ijkl}}. \quad (5.1)$$

Der Ringaustausch agiert auf der Plaquette mit den Indizes $ijkl$ mit dem dazugehörigen Plaquette-Operator P_{ijkl} , vgl. dazu Abb. 1.1. In Analogie dazu folgt durch eine Transformation $S^+ \rightarrow b^\dagger$ und $S^- \rightarrow b$ der folgende Hamiltonoperator des Hard-Core-Boson-Modells

$$\mathcal{H} = -\frac{1}{2} \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \left(b_i^\dagger b_j + b_i b_j^\dagger \right) - \sum_{ijkl} K_{ijkl} \left(b_i^\dagger b_j b_k^\dagger b_l + b_i b_j^\dagger b_k b_l^\dagger \right), \quad (5.2)$$

Eine experimentelle Realisierung dieses Modells mit konkurrierenden Wechselwirkungen, also nächster-Nachbar-Wechselwirkung und Ringaustausch auf den Plaquetten, wurde mit ultrakalten Atomen in einem zweidimensionalen quadratischen optischen Gittern präsentiert [23].

Der Hamiltonoperator in Gl. (5.1) ohne Ringaustausch $K = 0$ ist das XY-Modell. Nach dem Mermin-Wagner-Theorem ist bei endlichen Temperaturen auf dem zweidimensionalen XY-Modell eine langreichweitige Ordnung verboten. Jedoch kann der Phasenübergang als Kosterlitz-Thouless-(KT)-Übergang beschrieben werden [205, 206]. Wichtige Eigenschaften des KT-Übergangs sind dabei das Verhalten der Korrelationsfunktionen und der Spinsteifigkeit, die im Weiteren beschrieben werden. Für $T < T_{\text{KT}}$ fallen die Korrelationsfunktionen algebraisch ab, und für $T > T_{\text{KT}}$ exponentiell ab. Die Korrelationsfunktionen $\langle S(0)S(r) \rangle$ lassen sich oberhalb und unterhalb der Kosterlitz-Thouless-Temperatur T_{KT} wie folgt beschreiben

$$\langle S(0)S(r) \rangle \propto \begin{cases} r^{-\eta} & T < T_{\text{KT}} \\ e^{-r/\xi} & T > T_{\text{KT}} \end{cases}, \quad (5.3)$$

wobei $\eta = T/(2\pi J)$ und ξ die Korrelationslänge ist. Bei $T = 0$ ist eine langreichweitige Ordnung möglich, weil $r^{-\eta} = \text{const}$ mit $\eta = 0$ ist. Für endliche Temperaturen $T > 0$ ist keine langreichweitige Ordnung vorhanden und damit ist das Mermin-Wagner-Theorem nicht verletzt. Die langreichweitige Ordnung kann durch Vortex-Anti-Vortex-Bindungen unterhalb $T < T_{\text{KT}}$ verstanden werden. In diesem Kapitel sind vor allem die Quantenphasen und Eigenschaften im Grundzustand interessant, deshalb werden die Vortices nicht näher untersucht.

Die Spinsteifigkeit ρ_S beschreibt, wie viele freie Energie es kostet, die Spins um einen Twistwinkel zu drehen. Unterhalb von $T < T_{\text{KT}}$ ist die Spinsteifigkeit endlich und verschwindet für $T > T_{\text{KT}}$. Bei $T = T_{\text{KT}}$ wurde für die Spinsteifigkeit ein universelles Verhalten für alle Systeme, die einen KT-Übergang haben, gefunden [207]

$$\frac{\rho_S(T_{\text{KT}})}{T_{\text{KT}}} = \frac{2}{\pi}. \quad (5.4)$$

Der Hamiltonoperator in Gl. (5.1) kann für den Fall $J \geq 0$ und $K \geq 0$ mit der QMC-Methode ohne Vorzeichenproblem untersucht werden. Eine Betrachtung dieses Modells für $K > 0$ ist nur mit der Plaquette-SSE möglich, die in Abschnitt 2.2.1 beschrieben wurde. Die langreichweitige Ordnung des Grundzustands des XY-Modells ist eine bosonische Superfluidität bzw. ein planarer Ferromagnet in der Ebene mit dem Ordnungsparameter $\langle S^x \rangle \neq 0$ bei $T = 0$. Unter anderem durch die Einführung eines endlichen Ringaustausches der Stärke K sind weitere interessante Quantenphasenübergänge zu erwarten. In dieser Arbeit werden drei verschiedene Gittertypen untersucht, das Quadrat-, das Dreiecks- und das Kagome-Gitter. Im Folgenden werden die bisherigen Erkenntnisse für diese Gittertypen beschrieben.

Quadratgitter

Der Hamiltonoperator aus Gl. (5.1) auf dem Quadratgitter war bereits Bestandteil von QMC-Simulationen, die ergeben haben, dass das System für $J \gg K$ ein planarer Ferromagnet ist und für $J \ll K$ eine antiferromagnetische Néel-Ordnung anstrebt. Inmitten dieser Phasen existiert eine VBS-Ordnung der Plaquetten [208]. Das Quantenphasendiagramm mit externem Magnetfeld hat die Stabilität dieser Phasen bestätigt [209]. Auch wenn für $K < 0$ eine Exciton-Bose-Flüssigkeitsphase für Bosonen auf dem Quadratgitter mit Ringaustausch entdeckt wurde [210, 211], konnte für $K > 0$ keine Quantenspinflüssigkeitsphase gefunden werden.

Dreiecksgitter

Balents and Paramakanti [212] untersuchten Gl. (5.1) auf dem Dreiecksgitter für $J \ll K$. Im Grenzfall $J = 0$ führt der Ringaustausch zu einem entarteten Grundzustand mit lückenlosen Anregungen und kritischen Potenzgesetz-Korrelationen. Für $J \neq 0$ wurde ein Grundzustand mit einer kleinen Spinsteifigkeit gefunden. Dieser Zustand ist durch eine $\uparrow\uparrow\downarrow$ -Ordnung auf jeder einzelnen Plaquette charakterisiert, welcher zuerst bei endlichen Magnetfeldern im $SU(2)$ invarianten Ringaustauschmodell beobachtet wurde [213–215]. QMC-Simulationen konnten keinen Phasenübergang aus der ferromagnetischen Phase für ein endliches K finden [216].

Kagome-Gitter

Die Klasse der Balents-Fisher-Girvin-Modelle (BFG) auf dem Kagome-Gitter ist ein bereits mehrfach diskutierter Kandidat für eine \mathbb{Z}_2 -QSL [217]. Im Grenzfall starker Anisotropie sind die Niederenergiezustände exponentiell entartet und generieren einen Ringaustausch $K \sim J_{XY}^2/J_z$ auf den Ecken der Sanduhren¹ (\bowtie) und das BFG-Modell kann durch den Hamiltonoperator in Gl. (5.1) beschrieben werden. Der Ringaustausch kann zu Dynamiken ähnlich eines Quanten-Dimer-Modells [218, 219] führen und realisiert eine dazu ähnliche \mathbb{Z}_2 -Eichstruktur [220–226]. Folglich sind die BFG-QSL topologisch-geordnete vierfach-entartete Grundzustände auf einem Torus in zwei Dimensionen [52, 227, 228]. Die nicht-lokalen Elementaranregungen sind analog zum Toric-Code, z. B. elektrische e -Teilchen (Spinonen) und magnetische m -Teilchen (Visonen) [219, 228–230]. Diese Teilchen sind relative Semionen [228, 229] und in den BFG-Modellen folgen die Spinonen der bosonischen Statistik [217]. Weitere Eigenschaften der \mathbb{Z}_2 -QSL sind in der BFG-Phase zu finden, z. B. Randzustände für offene Randbedingungen [231] und eine topologische Verschränkungsentropie [225, 226]. QMC-Simulationen konnten

¹engl. *bow-tie*

einen Phasenübergang für $J \gg K$ aus dem planaren Ferromagneten zu einer \mathbb{Z}_2 -QSL-Phase für $J \ll K$ finden [224, 232]. Varianten dieses Modells mit weiteren Wechselwirkungen, wie einer S^z -Komponente, wurden untersucht, wobei entweder der Fokus auf der Spin- oder der äquivalenten Hard-Core-Boson-Formulierung lag [221–223, 225, 226, 233].

Gliederung

Erstens wird in Abschnitt 5.1 der Quantenmagnetismus des XY-Modells mit Ringaustausch auf dem trimerisierten **Kagome-Gitter** in Abhängigkeit der Trimerisierung untersucht. Dazu werden zuerst die Phasen und Eigenschaften des Modells näher erläutert, um im Anschluss die lineare Spinwellentheorie des XY-Modells auf dem Kagome-Gitter in Abschnitt 5.1.1 zu zeigen. In Abschnitt 5.1.2 lässt sich aus den QMC-Simulationen die Spinsteifigkeit berechnen, um in Abschnitt 5.1.3 die Änderung des quantenkritischen Punktes in Abhängigkeit der Austauschwechselwirkungen zu untersuchen. Danach wird in Abschnitt 5.1.4 der statische Spin-Strukturfaktor in den zwei Phasen gezeigt. Außerdem werden in Abschnitt 5.1.5 der dynamische Spin-Strukturfaktor und die elementaren Anregungen diskutiert.

Zweitens wird in Abschnitt 5.2 das **XY-Modell mit anisotroper nächster-Nachbar-Wechselwirkung** und Ringaustausch beschrieben. Die Einführung einer anisotropen Heisenberg-Wechselwirkung J ermöglicht die Darstellung des Modells im Grenzfall auf dem Quadrat- bzw. Dreiecksgitter. Weiterhin werden die Ergebnisse der linearen Spinwellentheorie des Modells mit Ringaustausch in Abschnitt 5.2.1 gezeigt. Im Anschluss werden die Ergebnisse der Spinsteifigkeit in Abschnitt 5.2.2, des statischen Spin-Strukturfaktors in Abschnitt 5.2.3, des dynamischen Spin-Strukturfaktors in Abschnitt 5.2.4 und des Quantenphasendiagramms in Abschnitt 5.2.5 diskutiert.

5.1 Trimerisiertes Kagome-XY-Modell mit Ringaustausch

Dieser Abschnitt basiert auf einer Vorveröffentlichung:

[R1] N. Casper, W. Brenig, Phys. Rev. B **103**, 094434 (2021).

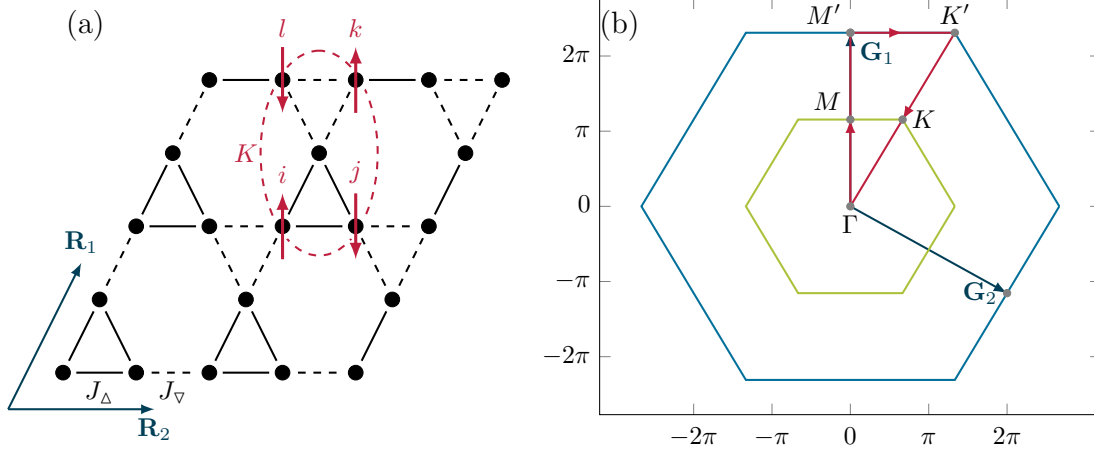


Abbildung 5.1.: (a) Trimerisiertes Kagome-Gitter mit nächster-Nachbar-Wechselwirkung $J_{\Delta(\nabla)}$ und Ringaustausch-Wechselwirkung K . (b) Erste und zweite Brillouin-Zone mit einem Weg entlang der hochsymmetrischen Punkte.

©Urheberrechtlich geschützte Abbildung mit Genehmigung durch die American Physical Society angepasst von Ref. [R1].

Die trimerisierte² Version des Modells in Gl. (5.1) ist

$$\mathcal{H} = -\frac{1}{2} \left(\sum_{\Delta \langle ij \rangle} J_{\Delta} S_i^+ S_j^- + \sum_{\nabla \langle ij \rangle} J_{\nabla} S_i^+ S_j^- + h.c. \right) - K \sum_{\langle ijkl \rangle \in \bowtie} P_{ijkl}, \quad (5.5)$$

wobei $J_{\Delta(\nabla)}$ das durchgezogene (gestrichelte) Dreieck nach oben (unten) auf dem Kagome-Gitter mit dem Ringaustausch K auf den verschiedenen orientierten Sanduhren (\bowtie) ist, wie in Abb. 5.1(a).

Für eine homogene nächste-Nachbar-Wechselwirkung $J_{ij} = J$ besitzt das Modell zwei Quantenphasen über J/K [224]. Für $K \rightarrow 0$ ist das Modell durch einen Spin-1/2-XY-Ferromagneten (FM) bzw. eine **Superfluid-Phase** im äquivalenten Hard-Core-Boson-Modell beschrieben. Im Grenzfall $J \rightarrow 0$ wurde eine BFG \mathbb{Z}_2 -**QSL-Phase** bestätigt. Die kritische Kopplung ist $(K/J)_c \approx 10.9$ [224], wobei sich die nächste-Nachbar-

²engl. *trimerized/breathing*

Wechselwirkung J in Gl. (5.5) um einen Faktor $1/2$ im Vergleich zu Ref. [224] unterscheidet. Bewegt man sich aus der QSL-Phase zum kritischen Punkt, kondensieren die Spinonen an einem XY-Phasenübergang. Das führt zu den Standardwerten der 3D XY-Universalitätsklasse, wie dem Exponenten der Divergenz der Korrelationslänge $\nu \simeq 0.6717$ und dem dynamischen kritischen Exponenten $z = 1$. Da $\eta^* \approx 1.339 - 1.493$ [226, 234–239] von der 3D XY-Universalitätsklasse mit $\eta \approx 0.038$ [240] abweicht, wird der Übergang als XY^* bezeichnet.

Die Erweiterung des Modells zu einer inhomogenen nächsten-Nachbar-Wechselwirkung durch die Trimerisierung ist motiviert durch Theorie und Experiment. Theoretische Analysen des antiferromagnetischen XYZ-Modells deuten darauf hin, dass die Trimerisierung die ungeordneten Quantenphasen und QSL-Phasen stabilisiert [241–247]. Jedoch gibt es für die BFG-Modelle eine solche Untersuchung nicht. Aus experimenteller Sicht konnten interagierende Hard-Core-Boson-Systeme auf trimerisierten Kagome-Gittern mit ultrakalten Atomen realisiert werden [248–252].

Das Kagome-Gitter ist ein Dreiecks-Bravais-Gitter mit den Gittervektoren

$$\mathbf{R}_1 = \begin{pmatrix} \frac{1}{2} \\ \frac{\sqrt{3}}{2} \end{pmatrix}, \quad \mathbf{R}_2 = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad (5.6)$$

der Gitterkonstanten $l=1$ und einer Einheitszelle mit drei Plätzen bei

$$\mathbf{r}_0 = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad \mathbf{r}_1 = \begin{pmatrix} \frac{1}{4} \\ \frac{\sqrt{3}}{4} \end{pmatrix}, \quad \mathbf{r}_2 = \begin{pmatrix} \frac{1}{2} \\ 0 \end{pmatrix}, \quad (5.7)$$

wobei der Abstand zwischen den Plätzen $a = 1/2$ und die Anzahl der Spins $N = 3L^2$ ist. Die Gitterkoordinaten des Kagome-Gitters sind dann

$$\mathbf{R}_{i\alpha} = n_{1i}\mathbf{R}_1 + n_{2i}\mathbf{R}_2 + \mathbf{r}_\alpha \quad \text{mit} \quad n_{1i(2i)} = 0, 1, \dots, L-1. \quad (5.8)$$

Die reziproken Gittervektoren sind

$$\mathbf{G}_1 = \begin{pmatrix} 0 \\ \frac{4\pi}{\sqrt{3}} \end{pmatrix}, \quad \mathbf{G}_2 = \begin{pmatrix} 2\pi \\ -\frac{2\pi}{\sqrt{3}} \end{pmatrix}, \quad (5.9)$$

wobei $\mathbf{G}_i \cdot \mathbf{R}_j = 2\pi\delta_{ij}$ gilt und die Brillouin-Zone, vgl. dazu Abb. 5.1(b), definiert ist durch

$$\mathbf{q} = \frac{n_1}{L} \mathbf{G}_1 + \frac{n_2}{L} \mathbf{G}_2 \quad \text{mit} \quad n_{1,2} = 0, 1, \dots, L-1. \quad (5.10)$$

In diesem Kapitel werden eine Vielzahl an dimensionslosen Parametern benutzt, wie z. B. $j = J_\nabla/J_\Delta$, $k = K/J_\Delta$ und $\kappa = K/\bar{J}$. Dabei ist die mittlere Austauschwechselwirkung $\bar{J} = (J_\Delta + J_\nabla)/2$ mit ihrem dimensionslosen Pendant $\bar{j} = \bar{J}/J_\Delta = (1+j)/2$ definiert. Außerdem wird nur der Bereich $0 \leq j \leq 1$ und $k \geq 0$ untersucht und damit hat die QMC keine Vorzeichenproblem.

5.1.1. Lineare Spinwellentheorie

In der Superfluid-Phase und für $\kappa = 0$ können die Spektren aus der QMC mit Magnon-Anregungen der linearen Spinwellentheorie (LSWT) verglichen werden. Der klassische Grundzustand dieses Modells ist ein Ferromagnet in der XY-Ebene. Die Holstein-Primakoff-Darstellung entlang der Quantisierungsachse x und bis zur führenden Ordnung von $\mathcal{O}(1/S)$ ist

$$\begin{aligned} S_m^x &= S - a_m^\dagger a_m \\ S_m^y &\approx \frac{\sqrt{2S}}{2i} (a_m - a_m^\dagger) \end{aligned} \quad (5.11)$$

mit den Boson-Operatoren $a_m^{(\dagger)}$. Diese Darstellung kann in Gl. (5.5) eingesetzt und Fourier transformiert werden

$$\mathcal{H}^{(2)} = S \sum_{\mathbf{q}} \Psi_{\mathbf{q}}^\dagger \underbrace{\begin{pmatrix} z\bar{J} \cdot \mathbb{1} - \mathbb{F}(\mathbf{q}) & \mathbb{F}(\mathbf{q}) \\ \mathbb{F}(\mathbf{q}) & z\bar{J} \cdot \mathbb{1} - \mathbb{F}(\mathbf{q}) \end{pmatrix}}_{\mathbb{M}(\mathbf{q})} \Psi_{\mathbf{q}}, \quad (5.12)$$

wobei $z = z_\Delta + z_\nabla = 2 + 2 = 4$ die Koordinationszahl,

$$\Psi_{\mathbf{q}} = (a_{0,\mathbf{q}}^\dagger \ a_{1,\mathbf{q}}^\dagger \ a_{2,\mathbf{q}}^\dagger \ a_{0,\mathbf{q}} \ a_{1,\mathbf{q}} \ a_{2,\mathbf{q}})^T \quad (5.13)$$

der Erzeugungs- und Vernichtungs-Spinor ist. 0, 1, und 2 markieren die Plätze in der Einheitszelle. $\mathbb{F}(\mathbf{q})$ beschreibt die Hüpfmatrixelemente

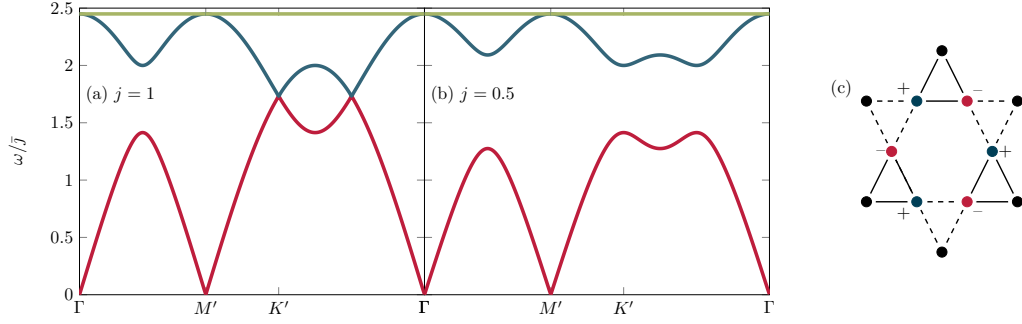


Abbildung 5.2.: LSWT-Dispersion für (a) $j = 1$ und (b) $j = 0.5$. (c) Flaches optisches Band entsteht durch das wiederholende interferierende Muster auf den Sechsecken.

$$\mathbb{F}(\mathbf{q}) = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & J_{\Delta} e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_1} + J_{\nabla} e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_1} & J_{\Delta} e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_2} + J_{\nabla} e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_2} \\ J_{\Delta} e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_1} + J_{\nabla} e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_1} & 0 & J_{\Delta} e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1)} + J_{\nabla} e^{-i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1)} \\ J_{\Delta} e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_2} + J_{\nabla} e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_2} & J_{\Delta} e^{-i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1)} + J_{\nabla} e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1)} & 0 \end{pmatrix}. \quad (5.14)$$

Die Magnon-Dispersion erhält man aus der paraunitären Säkulargleichung

$$\det |S \mathbb{A} \cdot \mathbb{M}(\mathbf{q}) - \omega \mathbb{1}| = 0, \quad (5.15)$$

wobei die paraunitäre Einheitsmatrix \mathbb{A} definiert ist durch

$$\mathbb{A} = \begin{pmatrix} \mathbb{1} & \mathbb{0} \\ \mathbb{0} & -\mathbb{1} \end{pmatrix}. \quad (5.16)$$

Damit lassen sich die Moden bestimmen

$$\omega_{0,1}^2 / J_{\Delta}^2 = \frac{\bar{j}}{2} \left[6\bar{j} \mp \sqrt{(3j-1)^2 + 8[1+j\gamma(\mathbf{q})]} \right], \quad (5.17)$$

$$\omega_2^2 / J_{\Delta}^2 = \frac{3}{2} (1+j)^2 = 6\bar{j}^2. \quad (5.18)$$

dabei ist die Impulsabhängigkeit gegeben durch

$$\gamma(\mathbf{q}) = \cos(2\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_1) + \cos(2\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_2) + \cos(2\mathbf{q} \cdot (\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1)) \quad (5.19)$$

und in Abb. 5.2(a)-(b) für $j = 1$ bzw. $j = 0.5$ dargestellt. In Gl. (5.17) gehört ω_0 zum Minuszeichen bzw. ω_1 zum Pluszeichen auf der rechten Seite der Gleichung. Die drei Zweige ω_0 und $\omega_{1,2}$ sind eine akustische und zwei optische Moden. Die optische Mode ω_2 ist komplett flach, da die Magnonen durch lokale Interferenzeffekte lokalisiert sind, welche durch ein sich wiederholendes Muster auf dem Kagome-Gitter entstehen, wie in Abb. 5.2(c) dargestellt. Am **K**-Punkt ist die Lücke zwischen der ω_0 - und ω_1 -Mode

$$\Delta_{01}(\mathbf{K}, j) \equiv \omega_0(\mathbf{K}, j) - \omega_1(\mathbf{K}, j) = \sqrt{3j}(1 - \sqrt{j}). \quad (5.20)$$

Für $j = 1$ berühren sich die dispersive optische und akustische Mode bei diesem Hochsymmetriepunkt.

5.1.2. Spinsteifigkeit

Die Spinsteifigkeit kann genutzt werden, um den quantenkritischen Punkt zu ermitteln. Dafür wird zuerst die endliche Spinsteifigkeit eines einzelnen Trimers analytisch berechnet. Danach wird das Skalenverhalten der Spinsteifigkeit aus QMC-Simulationen diskutiert.

Spinsteifigkeit eines XY-Trimers

Für $j = k = 0$ vereinfacht sich das Modell zu unverbundenen XY-Trimern auf einem Dreiecksgitter. Für diesen Grenzfall hat das Modell die endliche Spinsteifigkeit eines Trimers. Hier wird die analytische Berechnung der Spinsteifigkeit eines einzelnen Trimers durchgeführt. Dazu wird o.B.d.A. ein Twist ϕ entlang der x -Richtung des Trimers eingeführt. Dadurch wird nur der $S^z = \pm 1/2$ -Sektor beeinflusst, welcher zyklische Permutationen von $|\uparrow\downarrow\downarrow\rangle$ und $|\downarrow\uparrow\uparrow\rangle$ beinhaltet. Für $S^z = 1/2$ gilt

$$H_{\text{trimer}}^{S^z=1/2}(\phi) = -\frac{J_{\Delta}}{2} \begin{pmatrix} & |\uparrow\uparrow\downarrow\rangle & |\uparrow\downarrow\uparrow\rangle & |\downarrow\uparrow\uparrow\rangle \\ \begin{pmatrix} 0 & 1 & 1 \\ 1 & 0 & e^{i\phi} \\ 1 & e^{-i\phi} & 0 \end{pmatrix} \end{pmatrix} \quad (5.21)$$

und identisch für $S^z = -1/2$. Außerdem ist

$$H_{\text{trimer}}(\phi) |\uparrow\uparrow\uparrow (\downarrow\downarrow\downarrow)\rangle = 0 |\uparrow\uparrow\uparrow (\downarrow\downarrow\downarrow)\rangle. \quad (5.22)$$

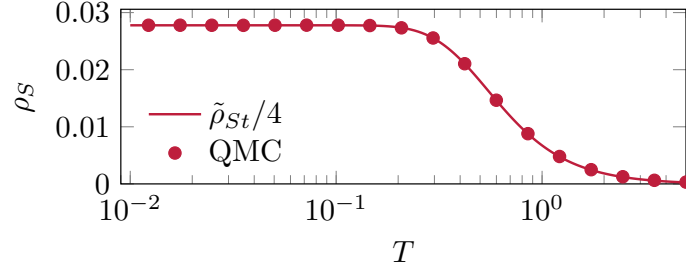


Abbildung 5.3.: Vergleich der Spinsteifigkeit über der Temperatur für einen einzelnen XY-Trimer $\tilde{\rho}_{St}(T)/4$ aus Gl. (5.24) mit dem QMC-Resultat für ein vollständig trimerisiertes Kagome-Gitter. Fehlerbalken sind kleiner als die Symbolgröße.

©Urheberrechtlich geschützte Abbildung mit Genehmigung durch die American Physical Society angepasst von Ref. [R1].

Die Spinsteifigkeit kann aus der freien Energie F ermittelt werden durch

$$\tilde{\rho}_{St}(T) = \left. \frac{\partial^2 F(\phi)}{\partial \phi^2} \right|_{\phi=0}. \quad (5.23)$$

Mittels Umrechnungen erhält man das analytische Ergebnis für die Spinsteifigkeit eines einzelnen Trimers

$$\tilde{\rho}_{St}(T) = \left[9 + \frac{9(2(e^{\frac{1}{2T}} + 3)T + 3)}{2(e^{\frac{3}{2T}} - 1)T - 3} \right]^{-1}. \quad (5.24)$$

Die Abb. 5.3 zeigt $\tilde{\rho}_{St}(T)/4$, wobei der Faktor 4 von L_α^2 aus Gl. (2.42) kommt. Für ein Kagome-Gitter mit nicht-verbundenen Trimeren, also $j = 0$, ist $L_\alpha = 2$, da es einen J_Δ - und einen (verschwindenden) J_∇ -Bond pro Raumrichtung gibt. Die Abb. 5.3 verifiziert außerdem, dass die QMC-Resultate $\rho_{St}(T)$ für einen einzelnen Trimer von den Gleichungen (2.43, 2.42) mit Gl. (5.24) übereinstimmen.

Skalenverhalten der QMC-Resultate

Es wurde bereits gezeigt, dass für $j = 1$ die Skalentheorie [253] angewendet werden kann und damit der quantenkritische Punkte bestimmt werden kann. Für den Bereich $j \neq 1$ ist nicht zu erwarten, dass sich dies ändert. Daraus folgt, dass die Spinsteifigkeit die Skalenrelation

$$\rho_S = L^{-z} \mathcal{F} \left((\kappa_C - \kappa) L^{1/\nu}, \beta/L^z \right) \quad (5.25)$$

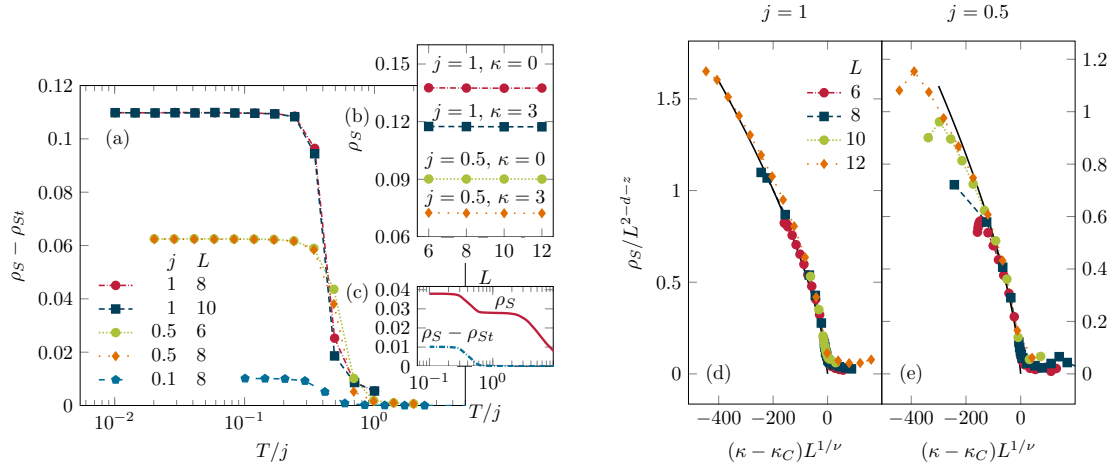


Abbildung 5.4.: (a) Spinsteifigkeit ρ_S für $\kappa = 0$, um die Spinsteifigkeit eines einzelnen Trimers ρ_{St} reduziert, ist für verschiedene Trimerisierungen $j = 1, 0.5, 0.1$ über einen großen Temperaturbereich gezeigt. Das Tieftemperatur-Plateau bestimmt die Skalierung $T^* = j/L$. *Beachte:* Die x-Achse ist mit j skaliert. Der Inset (b) zeigt die Spinsteifigkeit versus $L = 6, \dots, 12$ für die feste Temperatur $T = j/10$, verschiedene Trimerisierungsverhältnisse $j = 1, 0.5$ und den Ringaustausch $\kappa = 0, 3$. In Inset (c) ist der Vergleich der Spinsteifigkeit ρ_S und die reduzierte Spinsteifigkeit $\rho_S - \rho_{St}$ für $j = 0.1$ über der Temperatur gezeigt. Das Skalenverhalten bei $T = T^*$ für ρ_S/L^{2-d-z} versus $(\kappa - \kappa_C)L^{1/\nu}$ bei (d) $j = 1$ und (e) $j = 0.5$. Für $j = 1$ ($j = 0.5$) fallen die QMC-Daten bei $\kappa_C \approx 11.04$ ($\kappa_C \approx 10.97$) zusammen. Die durchgezogene schwarze Linie ist $\propto (\kappa_C - \kappa)^\nu$. Fehlerbalken sind kleiner als die Symbolgröße.

©Urheberrechtlich geschützte Abbildung mit Genehmigung durch die American Physical Society angepasst von Ref. [R1].

erfüllt mit der universellen Skalenfunktion \mathcal{F} . Unter Verwendung von $z = 1$ für den dynamischen kritischen Exponenten und der Fixierung der Temperatur, sodass $L^z/\beta = c$ bzw. $T = T^* = c/L$ konstant ist, wird die Funktion $\rho_S L$ über $(\kappa_C - \kappa)L^{1/\nu}$ für alle L auf einer einzelnen Kurve zusammenfallen. Dies ermöglicht die Ermittlung des quantenkritischen Punktes, wenn c so gewählt ist, dass T^* für ρ_S die Physik bei $T = 0$ widerspiegelt. Außerdem impliziert $\rho_S(\kappa = \text{const.}, L) = \text{const.}$ für $L \gg 1$ und $T \rightarrow 0$, dass $\mathcal{F}(x, \text{const}) \propto x^\nu$ gilt.

In Abb. 5.4(a) ist die Spinsteifigkeit über der Temperatur für verschiedene Trimerisierungen bei $\kappa = 0$, wo eine langreichweitige Ordnung bei $T = 0$ für $j = 1$ sicher ist, gezeigt. Zur besseren Darstellung wird die endliche Spinsteifigkeit eines einzelnen isolierten Trimers ρ_{St} aus Gl. (5.24) subtrahiert. In Abb. 5.4(c) ist zur Vollständigkeit der Einfluss von ρ_{St} bei $j = 0.1$ gezeigt. Mehrere Erkenntnisse können aus der Abbildung gewonnen werden. Erstens ist eine endliche Spinsteifigkeit im Übergang zum Tieftemperaturbereich erkennbar, die für steigende Trimerisierung sinkt. Die Wahl von T^* im

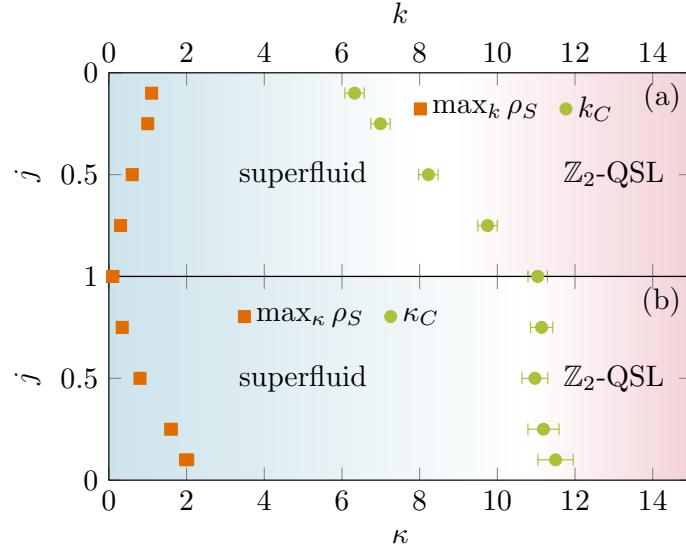


Abbildung 5.5.: Quantenphasendiagramm versus (a) Ringaustausch k , (b) reduzierter Ringaustausch κ und Trimerisierungen j . Grüne Kreise, kritische Kopplung (a) k_C , (b) κ_C für quantekritischen Punkt zwischen superfluider und QSL-Phase. Orangefarbene Quadrate, Position des Maximums von ρ_S . Wenn nicht sichtbar, ist der Fehlerbalken kleiner als die Symbolgröße. *Beachte:* Die Richtung der y -Achse ist verschieden in (a) und (b).

©Urheberrechtlich geschützte Abbildung mit Genehmigung durch die American Physical Society angepasst von Ref. [R1].

Tieftemperaturbereich ist daher ausreichend für das Skalenverhalten, da damit bereits das Verhalten bei $T = 0$ beschrieben wird. Zweitens fällt der Übergang der Spinsteifigkeit vom Hochtemperatur- zum Tieftemperaturbereich für verschiedene j durch eine Reskalierung der Temperatur mit j zusammen. Drittens ändert sich der Übergang wenig für verschiedene Systemgrößen L . Zusammenfassend ist $c \simeq j$ eine gute Wahl und es wird $T^* = j/L$ für den Rest des Abschnitts gewählt.

Außerdem ist in Abb. 5.4(a) zu erkennen, dass der Wert von $\rho_S - \rho_{St}$ im Tieftemperatur-Limes nur wenig von der Systemgröße abhängt. Ausreichend nahe am quantenkritischen Punkt hat dies für das Skalenverhalten folgenden Einfluss. Die universelle Skalenfunktion $\mathcal{F}(x, y)$ ist in ihrem asymptotischen Bereich $\mathcal{F}(x, \text{const}) \propto x^\nu$ für jede Temperatur im Tieftemperaturbereich. Für ein festes κ_C gilt damit $\rho_S \propto L^{-z}(L^{1/\nu})^\nu = \text{const}$ über L . Für ρ_{St} ist die Beziehung trivial erfüllt. Der Inset in Abb. 5.4(b) zeigt, dass die Unabhängigkeit der Systemgröße für ρ_S bei einer tiefen Temperatur über einen großen Bereich von j - und κ -Werten gültig ist.

Durch die Wahl von $T = T^*$ kann nun das Quantenphasendiagramm durch Optimierung des Zusammenfallens aller Funktionen $\rho_S L^z$ über $(\kappa_C - \kappa)L^{1/\nu}$ für $L = 6 \dots 12$ bei

festem j ermittelt werden. Für verschiedene Trimerisierungen $j = 0.1 \dots 1$ und unter Verwendung der 3D XY* Universalitätsklasse mit $z = 1$ and $\nu = 0.6717$ ist κ_C als einziger Fit-Parameter übrig.

Die Ergebnisse der Optimierung sind in Abb. 5.4(d)-(e) für zwei ausgewählte j gezeigt. Ein ähnliches Verhalten ist für alle anderen j gegeben. Das Zusammenfallen ist deutlich erkennbar und führt zu einem kritischen Ringaustausch $\kappa_C \approx 11.04$ und 10.97 für $j = 1$ bzw. 0.5 . Der Wert für $\kappa_C(j = 1)$ stimmt mit vorherigen Ergebnisse überein [224]. Die Abbildung zeigt eine weitere Funktion $\propto (\kappa - \kappa_C)^\nu$, welche gut mit den QMC-Resultaten in der geordneten Phase übereinander gelegt werden kann. Neben dem Zusammenfall der einzelnen Funktionen unterstützt diese Funktion die Hypothese, dass das Skalenverhalten auch bei endlicher Trimerisierung genutzt werden kann. In der langreichweitig geordneten Phase mit $j \neq 1$, und damit weit weg vom quantenkritischen Punkt, gibt es nicht-universelle Korrekturen, wie ein Maximum in $\rho_S L$ für ein endliches κ . Dieses Maximum ist für alle $j \neq 1$ sichtbar, wobei es keine Anzeichen für eine neue Phase neben der superfluiden und QSL-Phase für $j \neq 1$ gibt.

5.1.3. Quantenphasendiagramm

Mithilfe aller ermittelten $\kappa_C(j)$ kann nun das Quantenphasendiagramm aus Ref. [224] von der Linie $j = 1$ in die (κ, j) -Ebene erweitert werden. Dies ist in Abb. 5.5(b) gezeigt. Erwähnenswert ist für einen reduzierten Ringaustausch

$$\kappa = 2K/(J_\Delta + J_\nabla) = 2(K/J_\Delta)/(1 + j), \quad (5.26)$$

dass der Übergang bei einem festen κ versus j innerhalb der Fehlerbalken platziert ist. Anders gesagt entspricht das beim Entfernen der j -Abhängigkeit der x -Achse von Abb. 5.5(a) einer Vergrößerung der Tendenz eine QSL zu formen, für größere Trimerisierung. Das kann verstanden werden durch die Verringerung der bosonischen kinetischen Energie mit j , wenn man sich in die superfluide Phase hineinbewegt. Mit der in Abschnitt 5.1.1 beschriebenen LSWT bei $\kappa = 0$ ist jeder Spin mit vier Nachbar-spins verbunden, zwei davon durch J_Δ und zwei durch J_∇ . Damit ist der Beitrag der führenden Ordnung $\mathcal{O}(1/S)$ zur Energie gerade proportional zu \bar{j} , was auch in den Gleichungen (5.17, 5.18) ersichtlich ist.

Über das Quantenphasendiagramm bei $j \rightarrow 0$ lässt sich nur spekulieren. Erstens verhindern Konvergenzprobleme der QMC eine direkte Untersuchung von $j = 0$. Zweitens kann genau bei $j = \kappa = 0$ keine langreichweitige superfluide Phase existieren, da das System aus nicht-verbundenen Trimeren besteht. Abschließend ist es wahrscheinlich, dass eine QSL-Phase für $\kappa > \kappa_C$ auch bei $j = 0$ existiert. Für $\kappa < \kappa_C$ kann es zwei Szenarien geben. Einerseits kann, konsistent mit Abb. 5.4, die Spinsteifigkeit verschwinden für $j \rightarrow 0$, sodass $\rho_S \leq \rho_{St}$ auf der Linie $j = 0$ für alle $\kappa < \kappa_C$ gilt. Jedoch lässt das die

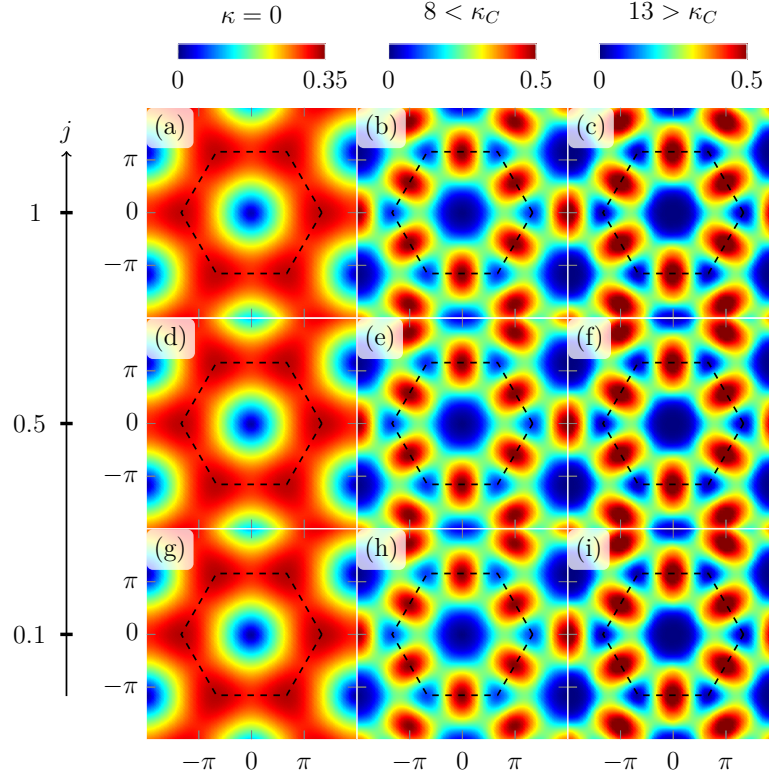


Abbildung 5.6.: SSSF $S(\mathbf{q})$ für verschiedene Trimerisierungsverhältnisse $j = 1, 0.5, 0.1$ und Ringaustauschkopplungen $\kappa = 0, 8 (< \kappa_C)$, und $13 (> \kappa_C)$. QMC für $L = 12$, $T = T^*$.

©Urheberrechtlich geschützte Abbildung mit Genehmigung durch die American Physical Society angepasst von Ref. [R1].

Eigenschaften des Zustandes für $\kappa < \kappa_C$ bei $j = 0$ unklar. Andererseits kann aus dem Maximum in ρ_S eine schwache langreichweitige Ordnung durch den Ringaustausch auch bei $j = 0$ erwartet werden, die ein nicht-monotones Verhalten für $\kappa < \kappa_C$ aufweist. Diese Frage bleibt hier jedoch offen.

5.1.4. Statischer Spin-Strukturfaktor

Der SSSF $S(\mathbf{q})$ ist in Gl. (2.46) über alle Plätze definiert und äquivalent zur statischen Dichte-Dichte-Korrelationsfunktion in der Hard-Core-Boson-Formulierung. Diese wurde benutzt um zu prüfen, ob der Übergang von der superfluiden in die \mathbb{Z}_2 -QSL-Phase durch eine Dichtewelle begleitet wird, d. h. die Peaks wie $\propto N$ skalieren. Diese Tatsache wurde für $j = 1$ ausgeschlossen [224] und nachgewiesen, dass die nicht-superfluide Phase keine diskreten Gittersymmetrien bricht und damit den QSL-Charakter unterstützt.

Bei Betrachtung des Quantenphasendiagramms in Abb. 5.5 ist der kurzreichweitige Charakter der longitudinalen Spin-Korrelationen auch für $j < 1$ wahrscheinlich. Deshalb wird anstelle der Finite-Size-Skalenbetrachtung, wie in Ref. [224], die Besonderheit diskutiert, dass der SSSF für den reskalierten Ringaustausch κ beinahe unabhängig von der Trimerisierung ist. Das ist in Abb. 5.6 gezeigt, wo die Konturplots von $S(\mathbf{q})$ für $T = T^*$, $L = 12$ und bei $\kappa = 0, 8 (< \kappa_C)$, und $13 (> \kappa_C)$ zu sehen sind.

Tatsächlich sind die Unterschiede in den Abbildungen entlang der vertikalen j -Richtung in jeder Spalte sehr klein. Die Entwicklung der Konturen entlang der κ -Richtung in der $j = 1$ -Zeile sind konsistent mit Ref. [224]. Für $\kappa \ll 1$ befindet sich die maximale Intensität in $S(\mathbf{q})$ aufgrund der nächsten-Nachbar-Korrelationen an den \mathbf{K} -Punkten. Wenn κ erhöht wird, erzeugen die übernächsten-Nachbar-Korrelationen eine maximale Intensität an den \mathbf{M} -Punkten und eine minimale Intensität an den $\mathbf{\Gamma}$ - und \mathbf{K} -Punkten.

5.1.5. Dynamischer Spin-Strukturfaktor

Zur Verbesserung der Qualität der analytischen Fortsetzung werden die Ergebnisse der QMC aus Gl. (2.58) entsprechend der Untergitter als 3×3 -Matrix betrachtet [232]

$$S_{\alpha\beta}(\mathbf{q}, \tau) = \frac{1}{N} \sum_{i,j} e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{R}_{i\alpha} - \mathbf{R}_{j\beta})} \left\langle S_{i\alpha}^+(\tau) S_{j\beta}^-(0) \right\rangle. \quad (5.27)$$

Da die Spur $\sum_{\alpha} S_{\alpha\alpha}(\mathbf{q}, \tau)$ invariant bezüglich einer unitären Transformation ist, wird die Matrix diagonalisiert und danach unabhängig für jeden Eigenwert $S_{\mu}(\mathbf{q}, \tau)$ mit $\mu=0,1,2$ die analytische Fortsetzung auf die reale Frequenzachse ω nach Gl. (2.61) ausgeführt

$$S_{\mu}(\mathbf{q}, \tau) = \int_0^{\infty} d\omega S_{\mu}(\mathbf{q}, \omega) K(\omega, \tau). \quad (5.28)$$

Das vollständige Spektrum ist dann über die Spur $\sum_{\mu} S_{\mu}(\mathbf{q}, \omega)$ zu berechnen. Auch wenn die einzelnen Eigenwerte $S_{\mu}(\mathbf{q}, \tau)$ nicht immer scharfe Eigenmoden darstellen, kann die Betrachtung hilfreich sein.

Wie aus dem Quantenphasendiagramm zu erwarten, gibt es zwei Arten von elementaren Anregungen. Erstens sind diese für $\kappa < \kappa_C$ Magnonen eines planaren Ferromagneten mit einer gebrochenen $U(1)$ -Restsymmetrie. Zweitens sind diese für $\kappa > \kappa_C$ Spinonen der \mathbb{Z}_2 -QSL. Der DSSF zeigt direkt das Magnon-Spektrum, jedoch kann dieser nicht für fraktionalisierte Ein-Teilchen-Anregungen verwendet werden. Jedoch zeigt der DSSF eine Zwei-Teilchen-Korrelationsfunktion und damit kann das Zwei-Spinonen-Spektrum, welches ein Kontinuum für jeden festen Wellenvektor ist, untersucht werden. Mithilfe von QMC bei $j = 1$ konnten Magnonen (Zwei-Spinonen-Kontinua) in der ferromagnetischen (QSL-)Phase direkt für den Hamiltonoperator aus Gl. (5.5) [233] und für ein

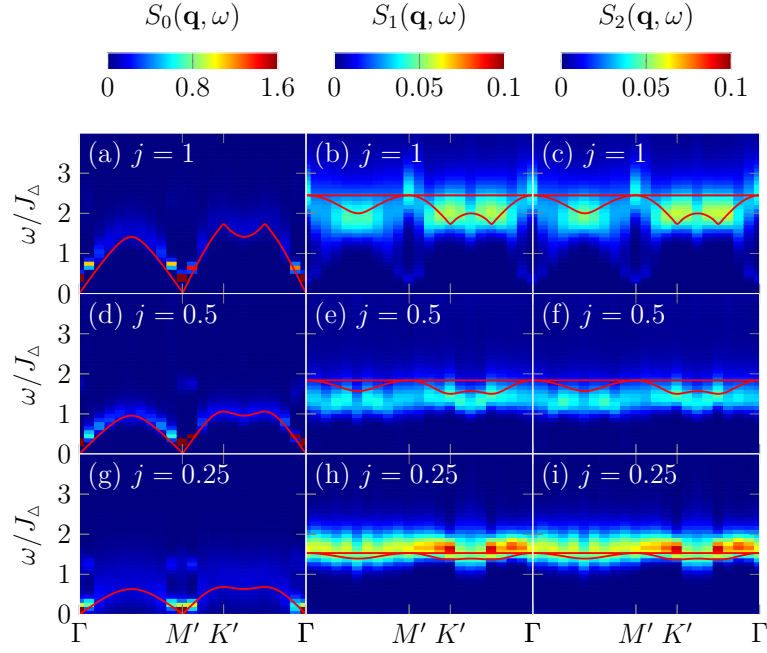


Abbildung 5.7.: Eigenwerte $S_\mu(\mathbf{q}, \omega)$ aus Gl (5.28) in der superfluiden Phase bei $\kappa = 0$ für drei Trimerisierungsverhältnisse $j = 1, 0.5, 0.25$ (Zeilen) entlang des Pfades aus Abb. 5.1(b) in der ersten und zweiten Brillouin-Zone. QMC für $L = 12$, $T = T^*$. Durchgezogene rote Linie: LSWT-Dispersionen aus Gleichungen (5.17, 5.18).

©Urheberrechtlich geschützte Abbildung mit Genehmigung durch die American Physical Society angepasst von Ref. [R1].

ähnliches Modell der BFG-Klasse [232] nachgewiesen werden. Hier wird der DSSF für $j \leq 1$ betrachtet. Zuerst liegt der Fokus auf den Magnonen bei $\kappa = 0$, da die Dynamik der QSL-Phase durch den Ringaustausch beeinflusst wird und nur kleine Effekte der Trimerisierung erwartet werden.

Die Abb. 5.7 zeigt die Entwicklung mit j der drei Eigenwerte $S_\mu(\mathbf{q}, \omega)$ für $\kappa = 0$. Die Dispersionen sind alle entlang der hochsymmetrischen Punkte der erweiterten Brillouin-Zone gezeigt, siehe Abb. 5.1(b). Jede Zeile der Abbildung zeigt typische Signaturen eines Ferromagneten mit einer Drei-Platz-Einheitszelle, d. h. ein akustisches Goldstone-Magnon und zwei optische Magnon-Zweige. Das spektrale Gewicht ist in der Goldstone-Mode beim Ordnungsvektor, dem Γ -Punkt, dominant. Der Effekt der Trimerisierung kann klar entlang der Spalten der Abb. 5.7 gesehen werden. Mit Verringerung von j wird die magnonische kinetische Energie reduziert, die Bandbreite beider Arten von Magnonen schrumpft entsprechend, wobei jedoch die akustische Mode den Goldstone-Charakter beibehält.

Um eine qualitative Abschätzung der Magnon-Energie zur führenden Ordnung $\mathcal{O}(1/S)$ zu erhalten, wurde in Abschnitt 5.1.1 die LSWT durchgeführt. Die erhaltenen LSWT-

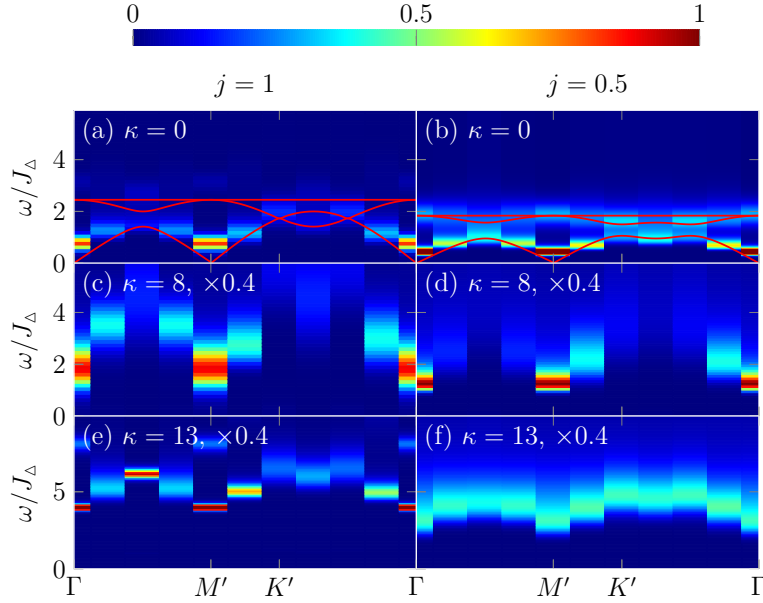


Abbildung 5.8.: DSSF $\sum_{\mu} S_{\mu}(\mathbf{q}, \omega)$ für drei Ringaustausch-Werte in der superfluiden Phase bei $\kappa = 0, 8$ (erste und zweite Zeile) und QSL-Phase bei $\kappa = 13$ (dritte Zeile) für zwei Trimerisierungsverhältnisse $j = 1, 0.5$ entlang des Pfades aus Abb. 5.1(b) in der ersten und zweiten Brillouin-Zone. QMC für $L = 6$ and $T = T^*$. Zur besseren Sichtbarkeit sind die Intensitäten reskaliert. Durchgezogene rote Linie in der ersten Zeile: LSWT-Dispersionen aus Gl. (5.17, 5.18). *Beachte:* Die y -Skalierung ist unterschiedlich. ©Urheberrechtlich geschützte Abbildung mit Genehmigung durch die American Physical Society angepasst von Ref. [R1].

Dispersionen sind in Abb. 5.7 hinzugefügt. Die Position stimmt gut mit den QMC-Resultaten für die Goldstone-Mode überein. Die beiden optischen Moden der LSWT-Dispersion haben die gleichen Energien wie $S_1(\mathbf{q}, \omega)$ und $S_2(\mathbf{q}, \omega)$, wobei diese nicht in unterscheidbare Moden aufgeteilt sind. Außerdem zeigt die Abbildung, dass bei höheren Energien die QMC-Spektren breiter werden und damit die Relevanz von Magnon-Magnon-Wechselwirkungen eine Rolle spielt.

Die Abb. 5.8 zeigt die Entwicklung des DSSF mit κ aus der superfluiden in die QSL-Phase entlang der zwei Linien mit $j = 1$ und $j = 0.5$. Jedes Spektrum entspricht der Spur über die drei diagonalen Moden $\sum_{\mu} S_{\mu}(\mathbf{q}, \omega)$. Die Werte von κ sind tief in der superfluiden Phase, $\kappa = 0$, sowie nahe am quantenkritischen Punkt in der superfluiden $\kappa = 8$ und QSL-Phase $\kappa = 13$ gewählt. Es sind mehrere Punkte hervorzuheben. Erstens zeigen die Spektren in der superfluiden Phase bei $\kappa = 0$ und $\kappa = 8$ ein klares Goldstone-Modenverhalten mit einem dominanten spektralen Gewicht am Γ -Punkt. Zweitens zeigt das spektrale Gewicht in der QSL-Phase Überreste davon bei $j = 1$, wobei für $j = 0.5$ der DSSF in der QSL-Phase ohne bestimmte Merkmale über dem Wellenvektor ist. Hierbei sei anzumerken, dass Letzteres mit der schlechteren Statistik der Resultate der

QMC für den Bereich großer κ und kleiner j zusammenhängen kann. Drittens wird durch Einführung eines Ringaustausches das Spektrum zu höheren Energien angehoben und verbreitert. Viertens zeigt die Abb. 5.8 die Öffnung einer Lücke am Γ -Punkt für steigendes κ . Dies könnte man mit dem Beginn der Zwei-Spinon-Lücke für $\kappa > \kappa_C$ in Verbindung bringen. Um dies zu belegen, sind größere Systeme notwendig, damit eine verschwindene Lücke für $\kappa < \kappa_C$ nachgewiesen werden kann. Dies ist jenseits der Resultate und bleibt eine offene Frage.

5.1.6. Zusammenfassung

Zusammenfassend wurde die Rolle der Trimerisierung im frustrierten planaren XY Spin-1/2 Ferromagneten auf dem Kagome-Gitter mit Ringaustausch untersucht. Es konnte gezeigt werden, dass die Physik des isotropen Falls nahezu invariant bezüglich der Trimerisierung sind, wenn die Austauschparameter richtig skaliert sind. Dabei wurde das Quantenphasendiagramm, bestehend aus der superfluiden und \mathbb{Z}_2 -QSL-Phase, das Skalenverhalten, die Universalitätsklasse und der statische Strukturfaktor untersucht. Hinsichtlich der Auswirkungen der Trimerisierung auf die Anregungen bleibt die lineare Spinwellentheorie eine einigermaßen gültige Beschreibung in der superfluiden Phase, während die Spinon-Kontinua in der QSL-Phase bei endlicher Trimerisierung sogar verstärkt gegenüber dem isotropen Fall sind.

5.2 XY-Modell vom Quadrat- zum Dreiecksgitter

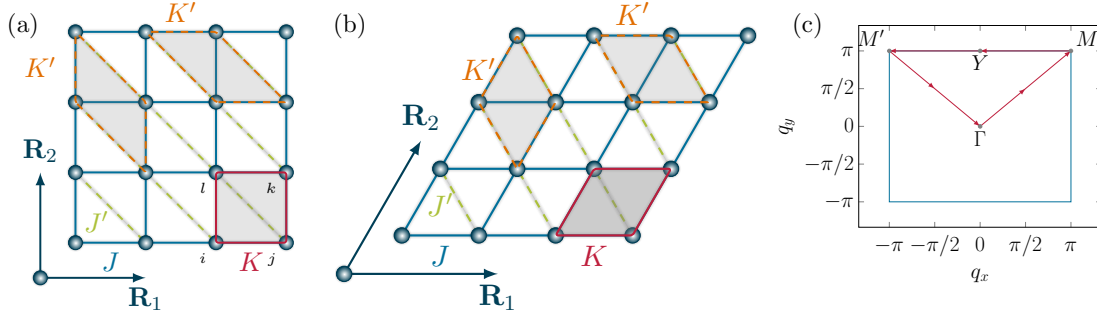


Abbildung 5.9.: (a) Anisotropes Quadratgitter mit nächster-Nachbar-Wechselwirkung J , übernächster-Nachbar-Wechselwirkung J' und Ringaustausch-Wechselwirkung auf allen möglichen K - und K' -Plaquetten mit drei Orientierungen und den Plätzen $ijkl$. (b) Das äquivalente anisotrope Dreiecksgitter mit Ringaustausch. (c) Die erste Brillouin-Zone des Quadratgitters mit dem Pfad entlang der Punkte hoher Symmetrie Γ - M - Y - M' - Γ .

Das XY-Modell vom Quadrat- (\square) zum Dreiecksgitter (\triangle) mit anisotropem Heisenberg- $J^{(l)} \geq 0$ und Ringaustausch $K^{(l)} \geq 0$, vgl. Abb. 5.9, kann durch den folgenden Hamiltonoperator beschrieben werden

$$\mathcal{H} = - \sum_{\square \langle ij \rangle} J B_{ij} - \sum_{\setminus \langle \langle ij \rangle \rangle} J' B_{ij} - \sum_{\square ijkl} K P_{ijkl} - \sum_{\diamond ijkl} K' P_{ijkl}, \quad (5.29)$$

wobei S_i^\pm die Spin-1/2-Erzeugungs-/Vernichtungsoperatoren am Platz i sind. Die Bond- B_{ij} bzw. Plaquette-Operatoren P_{ijkl} sind definiert durch

$$B_{ij} = \frac{1}{2} (S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^+) \quad (5.30)$$

$$P_{ijkl} = S_i^+ S_j^- S_k^+ S_l^- + S_i^- S_j^+ S_k^- S_l^+, \quad (5.31)$$

wobei Letztere auf Vier-Spin-Plaquetten agieren, wie in Abb. 5.9 gezeigt. Dieser Abschnitt wird sich auf den Bereich $K, K' \geq 0$ und $0 \leq J'/J \leq 1$ beschränken, da dieses Modell kein Vorzeichenproblem in der QMC hat. Um die Anzahl an freien Parametern zu reduzieren, wird das Verhältnis

$$\frac{K'}{K} = \frac{J'}{J} \Leftrightarrow K' = \frac{KJ'}{J} \quad (5.32)$$

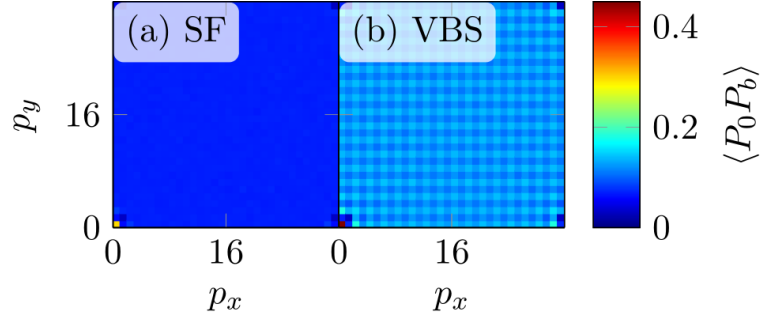


Abbildung 5.10.: Realraum-Plaquette-Korrelationsfunktion $\langle P_0 P_a \rangle$ in (a) der superfluiden Phase $K = 1$ und (b) in der VBS-Phase für $K = 7 > K_c$ mit den Parametern in der QMC-Simulation $J' = 0$, $L = 32$ und $T = 0.2$.

bei endlichem K festgehalten. Außerdem wird für den Rest des Abschnitts $J = 1$ als Energie-Skalierung gewählt. Die Basisvektoren sind

$$\mathbf{R}_1 = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad \mathbf{R}_2 = \begin{pmatrix} \cos \alpha \\ \sin \alpha \end{pmatrix}, \quad (5.33)$$

wobei der Abstand der nächsten Nachbarn mit $a = 1$ gewählt und auf dem Quadratgitter $\alpha = \pi/2$ bzw. Dreiecksgitter $\alpha = \pi/3$ ist. Bei einer Kantenlänge des Gitters von L ist die Anzahl der Spins $N = L^2$. Das System hat periodische Randbedingungen in beide Raumrichtungen.

Dieses Modell hat zwei interessante Grenzfälle. Einerseits reduziert sich das Modell für $K' = J' = 0$ zu einem Quadratgitter mit einem Plaquette-Ringaustausch, wofür bereits QMC-Ergebnisse existieren [208], unter anderem auch mit einem Magnetfeld [209]. Das resultierende Quantenphasendiagramm hat drei interessante Phasen. Das System geht aus einer planaren ferromagnetischen bzw. **superfluiden** (SF) Phase für $K \approx 3.95$ mittels eines kontinuierlichen Phasenübergangs 1. Ordnung in eine gestreifte Plaquette-Ordnung über, wobei letztere als **VBS**-Phase bezeichnet wird. Danach gibt es einen Phasenübergang 2. Ordnung bei $K \approx 7.25$ in eine **Néel**-Phase. Andererseits vereinfacht sich das Modell für $J' = J$ und $K' = K$ zu einem Dreiecksgitter mit drei unterschiedlich orientierten Ringaustauschen, welches bereits mithilfe von QMC untersucht wurde [216]. In diesem Modell konnte für den untersuchten Ringaustausch $K \leq 7.5$ kein Phasenübergang gefunden werden. Aufgrund der drei Phasen in dem einem Grenzfall und dem Fehlen eines Phasenübergangs im anderen Grenzfall ist eine Untersuchung des Quantenphasendiagramms innerhalb dieser Grenzen von Interesse. Hier soll deshalb die Frage, ob die VBS- bzw. Néel-Phase auch oberhalb der $J' = 0$ -Linie existiert, beantwortet werden. Im Weiteren werden alle Untersuchungen vom Quadratgitter-Grenzfall ausgehen, d. h. es gilt $\alpha = \pi/2$ für die Basisvektoren in Gl. (5.33).

Im Folgenden werden die Ordnungsparameter der einzelnen Phasen beschrieben. In der superfluiden Phase ist die Magnetisierung in der Ebene endlich, d.h. $\langle S^x \rangle \neq 0$ und damit ist eine endliche Spinsteifigkeit ρ_S zu erwarten. Der Ordnungsparameter der Néel-Phase kann aus dem Skalierungsverhalten des statischen Spin-Strukturfaktors aus Gl. (2.46) mit der Systemgröße N am Nestingvektor $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ berechnet werden

$$\langle M_S \rangle^2 = \frac{S_S(\pi, \pi)}{N}, \quad (5.34)$$

wobei $\max \langle M_S \rangle^2 = 1/4$. Die Realraum-Plaquette-Korrelationsfunktion zeigt nur für $K > K_c$, also in der VBS-Phase, eine gestreifte Struktur des Überlappens von Streifen in x - und y -Richtung, wie in Abb. 5.10 zu erkennen ist. Diese Struktur ist durch eine Fourier-Transformation im Impulsraum mit einem dominanten Peak bei $\mathbf{q} = (0, \pi)$ bzw. $(\pi, 0)$ charakterisiert. Mit offenen Randbedingungen in einer der Raumrichtungen ist die gestreifte Ordnung entlang der periodischen Randbedingungen besser zu erkennen, vgl. dazu die Resultate in Ref. [208]. Die VBS-Phase ist durch einen endlichen Ordnungsparameter

$$\langle M_P \rangle^2 = \frac{S_P(\pi, 0)}{N} = \frac{S_P(0, \pi)}{N} \quad (5.35)$$

definiert, der aus dem statischen Plaquette-Strukturfaktor $S_P(\mathbf{q})$ aus Gl. (2.47) beim Wellenvektor $\mathbf{q} = (\pi, 0)$ bzw. $\mathbf{q} = (0, \pi)$ berechnet wird, wobei hier nur Plaquette-Operatoren mit dem Ringaustausch K in Gl. (2.48) und keine K' -Operatoren berücksichtigt werden.

5.2.1. Lineare Spinwellentheorie

Um eine qualitative Beschreibung der elementaren Anregungen und der Spinsteifigkeit für das Modell in Gl. (5.29) zu erhalten, wird in diesem Abschnitt die lineare Spinwellentheorie beschrieben. Die hier vorgestellten Berechnungen sind kompatibel mit vorherigen Ergebnissen der linearen Spinwellentheorie in den Grenzfällen des Quadratgitters ($\square : J' = 0, K' = 0$) ohne ($K = 0$) [254] und mit ($K \geq 0$) [255] Ringaustausch und im Grenzfall des Dreiecksgitters ($\triangle : J = J', K = K'$) [256] mit Ringaustausch. Der klassische Grundzustand des Systems für den hier untersuchten Parameterbereich $J, J', K, K' \geq 0$ ist eine planare ferromagnetische Ordnung. Hierbei wird die Quantisierungsachse entlang der x -Richtung gewählt [257]. Die Holstein-Primakoff-Transformation ist definiert durch

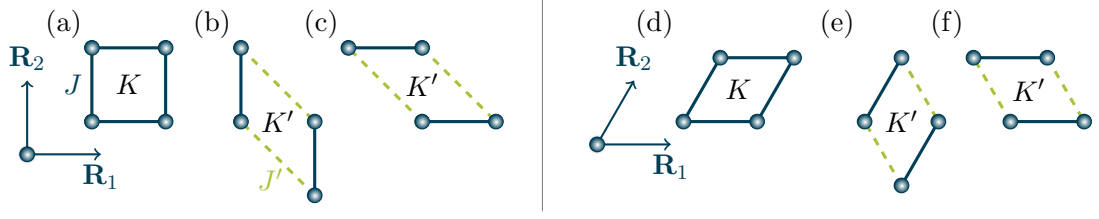


Abbildung 5.11.: Mögliche Orientierungen des Ringaustauschs auf dem (a)-(c) Quadratgitter und auf dem (d)-(f) Dreiecksgitter. Für die Plaquetten (a) bzw. (d) ist die Ringaustausch-Kopplung K , für die restlichen Plaquetten (b),(c),(e),(f) ist die Kopplung K' . Die (gestrichelten) Bonds haben die Heisenberg-Austauschkopplung $J^{(l)}$.

$$\begin{aligned} S_m^x &= S - a_m^\dagger a_m, \\ S_m^y &\approx \frac{\sqrt{2S}}{2i} (a_m^\dagger - a_m). \end{aligned} \quad (5.36)$$

Der Hamiltonoperator in Gl. (5.29) kann ähnlich zu Ref. [255] folgendermaßen diagonalisiert werden. Erstens wird die Holstein-Primakoff-Transformation aus Gl. (5.36) in den Hamiltonoperator aus Gl. (5.29) mit $S_m^\pm = S_m^x \pm iS_m^y$ eingesetzt. Zweitens werden nur die quadratischen Terme berücksichtigt und die Kommutatoren $[a_m, a_n^\dagger] = \delta_{mn}$ und $[a_m^\dagger, a_n^\dagger] = [a_m, a_n] = 0$ verwendet. Drittens wird eine Fourier-Transformation des Hamiltonoperators ausgeführt und mithilfe der Bogoljubov-Transformation [137, 138] diagonalisiert

$$\mathcal{H} = H_{\text{MF}} + \sum_{\mathbf{q}} (\omega_{\mathbf{q}} - A_{\mathbf{q}}) + \sum_{\mathbf{q}} \omega_{\mathbf{q}} (\alpha_{\mathbf{q}}^\dagger \alpha_{\mathbf{q}} + \alpha_{-\mathbf{q}}^\dagger \alpha_{-\mathbf{q}}). \quad (5.37)$$

Die Parameter sind gegeben durch

$$H_{\text{MF}} = -\frac{2J + J'}{2} SN - (K + 2K') S^3 N, \quad \omega_{\mathbf{q}} = \sqrt{A_{\mathbf{q}}^2 - B_{\mathbf{q}}^2}, \quad (5.38)$$

$$A_{\mathbf{q}} = U_{\mathbf{q}} + V_{\mathbf{q}}, \quad B_{\mathbf{q}} = W_{\mathbf{q}} + X_{\mathbf{q}}, \quad (5.39)$$

$$U_{\mathbf{q}} = \frac{2J + J'}{2} - W_{\mathbf{q}}, \quad W_{\mathbf{q}} = \frac{S}{2} \gamma_{\mathbf{q}}, \quad (5.40)$$

$$V_{\mathbf{q}} = \frac{K + 2K'}{2} - X_{\mathbf{q}}, \quad X_{\mathbf{q}} = S^3 \tilde{\gamma}_{\mathbf{q}}, \quad (5.41)$$

wobei die Dispersion $\omega_{\mathbf{q}}$ in Abb. 5.12 dargestellt ist und die Gitter-Struktur-Konstanten gegeben sind durch

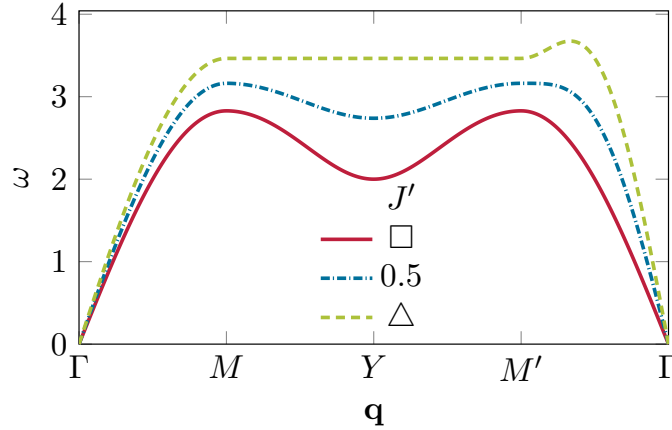


Abbildung 5.12.: Dispersion $\omega_{\mathbf{q}}$ aus der LSWT aus Gl.(5.38) für verschiedene Anisotropien $J' = 0, 0.5, 1$ ohne Ringaustausch $K = 0$ entlang des Pfades in der Brillouin-Zone wie in Abb. 5.9(c) gezeigt.

$$\gamma_{\mathbf{q}} = J \cos \mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_1 + J \cos \mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_2 + J' \cos \mathbf{q} \cdot (\mathbf{R}_2 - \mathbf{R}_1), \quad (5.42)$$

$$\begin{aligned} \bar{\gamma}_{\mathbf{q}} = & (2K + K') \cos \mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_1 + (2K + K') \cos \mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_2 + (4K' - K) \cos \mathbf{q} \cdot (\mathbf{R}_2 - \mathbf{R}_1) \\ & - K \cos \mathbf{q} \cdot (\mathbf{R}_1 + \mathbf{R}_2) - K' \cos \mathbf{q} \cdot (2\mathbf{R}_1 - \mathbf{R}_2) - K' \cos \mathbf{q} \cdot (2\mathbf{R}_2 - \mathbf{R}_1), \end{aligned} \quad (5.43)$$

wobei in Abb. 5.11 alle möglichen Ringaustausch-Plaquetten dargestellt sind.

Berechnung der Spinsteifigkeit mit der LSWT

Mit dem Hamiltonoperator der LSWT in Gl. (5.37) lässt sich die Spinsteifigkeit berechnen. Wie bereits in Gl. (2.41) beschrieben, wird dazu jeder Spin am Platz i um den Winkel ϕ_i gedreht. Die dazugehörige Transformation hat die Form $S_i^{\pm} \rightarrow S_i^{\pm} e^{\pm i \phi_i}$, wobei $\phi_i - \phi_j \equiv \phi$ für die nächsten Nachbarn i und j gelten soll. Dies führt im Hamiltonoperator zu

$$\mathcal{H}(\phi) = - \sum_{ij} J_{ij} B_{ij} \cos \phi - \sum_{ijkl} K P_{ijkl} \quad (5.44)$$

und ist äquivalent zu einer Reskalierung der NN $J_{ij} \rightarrow J_{ij} \cos \phi$, da der Twist $\phi_j = \phi_k$ und $\phi_i = \phi_l$ im Ringaustausch-Term sich selbst aufhebt. Diese Reskalierung gilt auch für die Gleichungen (5.38 - 5.41) und wird im Folgenden benutzt.

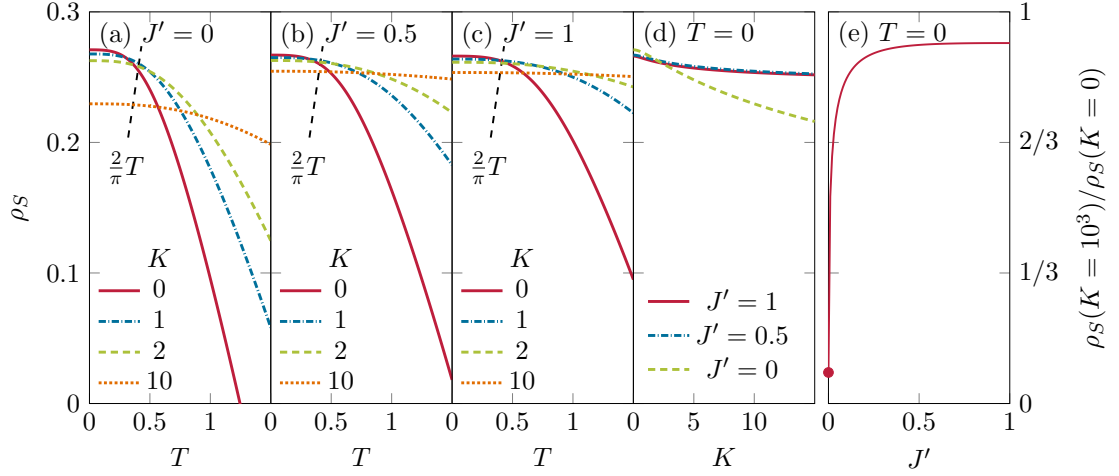


Abbildung 5.13.: Resultate der linearen Spinwellentheorie. Spinsteifigkeit ρ_S über der Temperatur T für verschiedene (a) $J' = 0$, (b) 0.5, (c) 1 und Ringaustausche $K = 0, 1, 2, 10$. Die gestrichelte schwarze Linie beschreibt die Bedingung der Kosterlitz-Thouless-Temperatur T_{KT} aus Gl. (5.4). (d) ρ_S über Ringaustausch K für verschiedene $J' = 0, 0.5, 1$ bei festem $T = 0$. (e) Der Quotient der Spinsteifigkeit ρ_S für großen Ringaustausch $K = 10^3 \gg 1$ normiert auf die Spinsteifigkeit ρ_S bei $K = 0$ ist $\rho_S(K = 10^3)/\rho_S(K = 0)$.

Die freie Energie F aus der Zustandssumme \mathcal{Z} des Hamiltonoperators in Gl. (5.37) ist

$$F(\phi) = -T \ln \mathcal{Z}(\phi) \quad (5.45)$$

$$= H_{MF}(\phi) + \sum_{\mathbf{q}} (\omega_{\mathbf{q}}(\phi) - A_{\mathbf{q}}(\phi)) + T \sum_{\mathbf{q}} \ln \left(1 - e^{2\omega_{\mathbf{q}}(\phi)/T} \right) \quad (5.46)$$

$$= E_0(\phi) + T \sum_{\mathbf{q}} \ln \left(1 - e^{2\omega_{\mathbf{q}}(\phi)/T} \right) \quad (5.47)$$

mit der Grundzustandsenergie E_0 . Die Entwicklung von $\cos \phi \sim 1 - \phi^2/2$ führt damit im Grenzfall $\phi \rightarrow 0$ zu

$$F(\phi) = F(\phi = 0) + \frac{1}{2} N_b \rho_S \phi^2 + \mathcal{O}(\phi^4) \quad \Leftrightarrow \quad \rho_S(T) = \lim_{\phi \rightarrow 0} \frac{2}{N_b} \frac{\partial^2 F(\phi)}{\partial \phi^2}, \quad (5.48)$$

wobei die Spinsteifigkeit auf die Anzahl der Bonds im System $N_b = (2 + J'/J)N$ normiert ist. Diese Normierung wird auch in der QMC in den Gleichungen (2.43, 2.42) verwendet und ermöglicht so den direkten Vergleich der Resultate. Damit kann die Spinsteifigkeit für endliche Temperaturen $T \geq 0$ folgendermaßen ermittelt werden

J'	$\rho_S(T \rightarrow 0, K = 0)$		T_{KT}	
	LSWT	QMC	LSWT	QMC
\square_0	0.2709 [255]	0.2696(2) [258]	0.401	0.3423(3) [259]
0.5	0.2669	0.2701(3)	0.408	0.4082(3)
\triangle_1	0.2661	0.2664(3)	0.412	0.4117(3)

Tabelle 5.14.: Resultate der Spinsteifigkeit ρ_S und der Kosterlitz-Thouless-Temperatur T_{KT} im Vergleich ermittelt mit der LSWT bzw. QMC für $L = 16$ und dazugehörige Literaturergebnissen für verschiedene $J' = \square_0, 0.5, \triangle_1$.

$$\rho_S(T) = \frac{SJ}{d} + \frac{2}{dN_b} \sum_{\mathbf{q}} \left[U_{\mathbf{q}} - \frac{1}{\omega_{\mathbf{q}}} (A_{\mathbf{q}} U_{\mathbf{q}} - B_{\mathbf{q}} W_{\mathbf{q}}) \left(1 + \frac{2}{e^{2\omega_{\mathbf{q}}/T} - 1} \right) \right], \quad (5.49)$$

dabei wurde durch die Dimension $d = 2$ dividiert und das Molekularfeld-Resultat ist $\rho_S^{\text{MF}} = SJ/d = 0.25J$. Im Grenzfall $J' = \square_0$ erhält man die äquivalente Spinsteifigkeit aus Ref. [255]. Im Grenzfall $J' = \triangle_1$ reduziert sich die Spinsteifigkeit um den Faktor N_b , wegen der Normierung in Gl. (5.48), gegenüber den Resultaten in Ref. [256]. Für $T = 0$ vereinfacht sich die Gleichung zu

$$\rho_S(T = 0) = \frac{SJ}{d} + \frac{2}{dN_b} \sum_{\mathbf{q}} \left[U_{\mathbf{q}} - \frac{1}{\omega_{\mathbf{q}}} (A_{\mathbf{q}} U_{\mathbf{q}} - B_{\mathbf{q}} W_{\mathbf{q}}) \right]. \quad (5.50)$$

Aus der Spinsteifigkeit kann die Kosterlitz-Thouless-Temperatur T_{KT} mit der Sprungbedingung aus Gl. (5.4) ermittelt werden. Die LSWT-Ergebnisse der Spinsteifigkeit ρ_S und die Kosterlitz-Thouless-Temperatur T_{KT} werden in der Tabelle 5.14 mit Ergebnissen aus der QMC verglichen. Ein Diskussion der Ergebnisse und deren Vergleich erfolgt im nächsten Abschnitt.

5.2.2. Spinsteifigkeit

Die Spinsteifigkeit ρ_S ist der Ordnungsparameter der superfluiden Phase. Die Resultate der Spinsteifigkeit aus der LSWT in Gl. (5.49) und der QMC in Gl. (2.43, 2.42) werden in diesem Abschnitt verglichen. Die QMC-Ergebnisse sind für die maximale Systemgröße $L = 16$ berechnet worden, Diese Systemgrößen reichen nicht aus, um die Systemgrößen-Abhängigkeit der Spinsteifigkeit nach Ref. [260, 261] zu untersuchen, um den Quantenphasenübergang zwischen der superfluiden und VBS-Phase im thermodynamischen Limes näher zu analysieren.

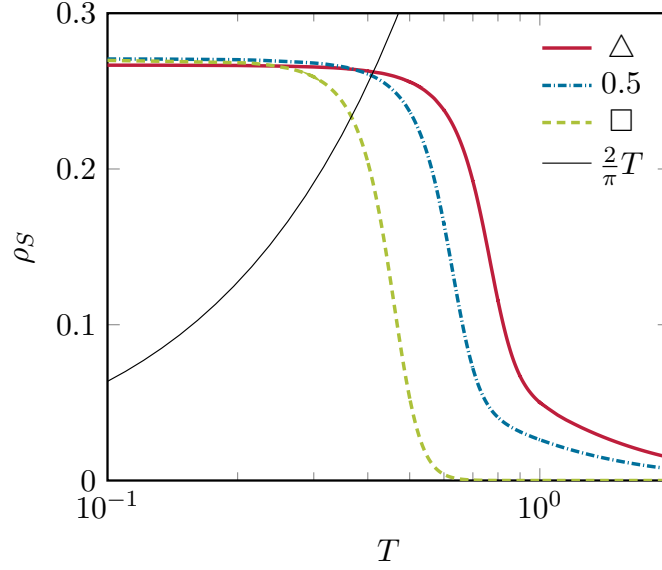


Abbildung 5.15.: Spinsteifigkeit ρ_S aus der QMC für $L = 16$ über der Temperatur für verschiedene Anisotropien $J' = 0, 0.5, 1$ sowie ohne Ringaustausch $K = 0$ und die Sprungbedingung zur Extrahierung der Kosterlitz-Thouless-Temperatur T_{KT} .

Zuerst wird die **Temperaturabhängigkeit** der Spinsteifigkeit ohne Ringaustausch $K=0$ diskutiert, um den Tief- und Hochtemperaturbereich identifizieren zu können. Die dazugehörigen Resultate der LSWT sind in Abb. 5.13(a)-(c) bzw. der QMC in Abb. 5.15 gezeigt. Die QMC-Resultate zeigen für alle J' eine endliche Spinsteifigkeit für tiefe Temperaturen $T \ll 1$ und eine verschwindende Spinsteifigkeit für hohe Temperaturen $T \gg 1$. Der Tieftemperatur-Limes der Spinsteifigkeit $\rho_S(T \rightarrow 0)$ ist in Tabelle 5.14 gezeigt und für die untersuchten Systemgrößen stimmen die Ergebnisse der LSWT und QMC gut überein. Im Hochtemperaturbereich fällt die Spinsteifigkeit für kleine J' schneller ab als im Grenzfall des $J' = \triangle_1$. Die Kosterlitz-Thouless-Temperatur aus Gl. (5.4) zeigt in Abhängigkeit von J' ein ähnliches Verhalten. In der LSWT und QMC ist eine kleine Kosterlitz-Thouless-Temperatur für kleine J' zu sehen. Die resultierenden Werte sind in Tabelle 5.14 dargestellt und zeigen auch hier eine gute Übereinstimmung der LSWT und QMC für die untersuchten Systemgrößen.

Nun soll die **Ringaustausch-Abhängigkeit** der Spinsteifigkeit diskutiert werden, da die Spinsteifigkeit bei einem kritischen Ringaustausch verschwindet und so Aufschluss über einen Phasenübergang gibt. In Abb. 5.13(d) ist die Spinsteifigkeit aus der LSWT und in Abb. 5.18 aus der QMC dargestellt. Die Ergebnisse der LSWT in Abb. 5.13(a)-(c) zeigen, dass die Spinsteifigkeit bei $T = 0$ durch die Erhöhung von K reduziert wird. Für $T > 0$ ist der Abfall der Spinsteifigkeit für kleine K langsamer als für große K . Die ermittelte Kosterlitz-Thouless-Temperatur steigt erst mit K an, erreicht ein Maximum bei $K \sim 6$ [255, 256] und fällt danach ab. Der Tieftemperatur-Limes der Spinsteifigkeit

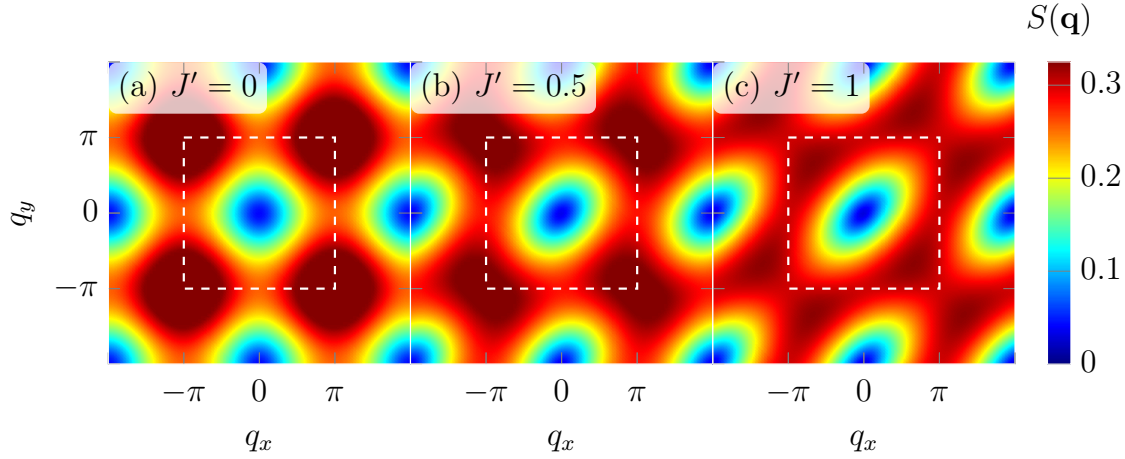


Abbildung 5.16.: SSSF mit QMC für $L = 16$, $T = 0.2$ und $J' = \boxed{0}, 0.5, \triangleup 1$. Weiße gestrichelte Linie: Brillouin-Zone.

$\rho_S(T \rightarrow 0)$ in Abhängigkeit des Ringaustausches kann jetzt genutzt werden, um einen Phasenübergang aus der superfluiden Phase heraus zu untersuchen. In der LSWT zeigt die Abb. 5.13(d) einen monotonen Abfall von ρ_S für ein steigendes K , wobei der Abfall für den Grenzfall $J' = \boxed{0}$ am deutlichsten ist. Interessant ist nun, wie sich ρ_S für $K \gg 1$ verhält. Dazu ist in Abb. 5.13(e) der prozentuale Abfall der Spinsteifigkeit für den großen Ringaustausch $\rho_S(K = 10^3)/\rho_S(K = 0)$ gezeigt. Auch wenn $K = 10^3$ außerhalb des Gültigkeitsbereich der LSWT liegt, ist die Tendenz von Interesse. Die LSWT zeigt einen Abfall von ρ_S im Grenzfall $J' = \boxed{0}$ auf $\sim 9\%$ des Wertes von $K = 0$. Dieses Verhalten ist nur für sehr kleine $J' \ll 1$ sichtbar und für den Grenzfall $J' = \triangleup 1$ fällt der Wert auf $\sim 91\%$ ab. Die Resultate der QMC zur Ringaustausch-Abhängigkeit von ρ_S sind in Abb. 5.18 für verschiedene J' gezeigt. Für alle J' kann ein monotonen Abfallen von ρ_S für ein steigendes K beobachtet werden. Für kleine $J' = 0 \dots 0.2$, vgl. Abb. 5.18(h)-(d), ist ein Verschwinden der Spinsteifigkeit zu beobachten. Für den Grenzfall $J' = \boxed{0}$ ist das Verhalten vergleichbar zu den Resultaten der LSWT und kompatibel zu QMC-Resultaten der Ref. [261]. Für größere $J' \geq 0.3$, vgl. Abb. 5.18(a)-(c), kann diese Tatsache nicht mehr im betrachteten Ringaustauschbereich $0 \leq K \leq 10$ bestätigt werden. Dieses Verhalten wird in der LSWT jedoch schon für kleinere $J' > 0$ beobachtet. Im Grenzfall $J' = \triangleup 1$ sind die QMC-Resultate konsistent mit Ref. [216].

5.2.3. Longitudinaler statischer Spin-Strukturfaktor

Der longitudinale statische Spin-Strukturfaktor (SSSF) $S(\mathbf{q})$ wird betrachtet. Der skalierte SSSF bei $\mathbf{q} = (\pm\pi, \pm\pi)$ entspricht dem Ordnungsparameter der Néel-Phase bei einer tiefen Temperatur $T \ll T_{KT}$, siehe dazu Gl. (5.34). Innerhalb der Néel-Phase ist ein dominanter Peak bei $\mathbf{q} = (\pm\pi, \pm\pi)$ zu erwarten. Der Verlauf des Peaks wird

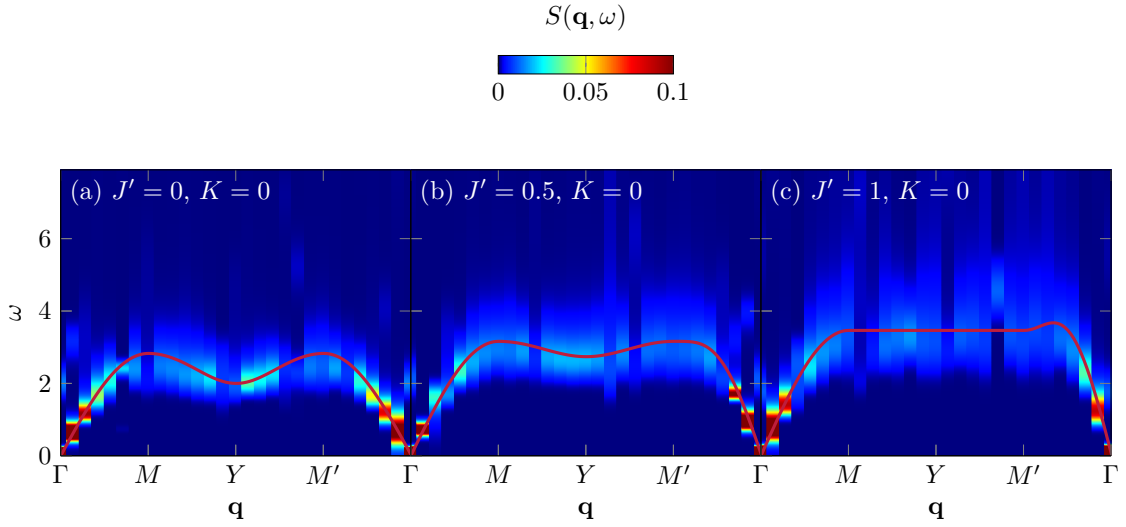


Abbildung 5.17.: DSSF mit QMC für $L = 16$, $T = 0.2$ und $J' = \square, 0.5, \triangle$ ohne Ringaustausch $K = 0$. Rote Linie: Dispersion ω aus Gl. (5.38) mit LSWT.

in Abschnitt 5.2.5 bzw. in Abb. 5.18 im Zusammenhang mit dem Quantenphasendiagramm näher erläutert. Hier wird sich auf den SSSF ohne Ringaustausch $K = 0$ für verschiedene J' beschränkt, vgl. Abb. 5.16. Für alle J' ist ein Minimum am Γ -Punkt festzustellen. Dazu ist in Abb. 5.16(a) der Grenzfall $J' = \square$ gezeigt. Hierbei ist ein Maximum an den M -Punkten zu sehen, das durch die nächste-Nachbar-Korrelationen auf dem Quadragitter entsteht. In Abb. 5.16(c) ist der Grenzfall $J' = \triangle$ gezeigt. Die gewählte Brillouin-Zone für alle Parameter entspricht der Brillouin-Zone des Quadratgitters, deshalb wirken die Abb. 5.16(b),(c) verzerrt. Trotz der Verzerrung ist für diesen Grenzfall die Struktur der nächsten-Nachbar-Korrelationen auf dem Dreiecksgitter zu erkennen, wobei die Korrelationen auf dem Quadratgitter einer nächsten-Nachbar-Korrelation in \mathbf{R}_1 - bzw. \mathbf{R}_2 - und einer übernächsten-Nachbar-Korrelation in $(\mathbf{R}_2 - \mathbf{R}_1)$ -Richtung entsprechen. Das Maximum verschiebt sich nun zum Impuls $\mathbf{q} = \pm(-2\pi/3, 2\pi/3)$. Für $J' = 0.5$ ist eine Mischung aus den Charakteristiken des Quadrat- bzw. Dreiecksgitters zu erkennen.

5.2.4. Transversaler dynamischer Spin-Strukturfaktor

In diesem Abschnitt werden die Anregungen des Modells ohne Ringaustausch $K = 0$ untersucht. Der transversale dynamische Spin-Strukturfaktor (DSSF) $S(\mathbf{q}, \omega)$ kann mithilfe der QMC, wie in Gl. (2.59) beschrieben, mit der Dispersion $\omega_{\mathbf{q}}$ der LSWT in Gl. (5.38) verglichen werden. Die Resultate der LSWT sind bereits in Abb. 5.12 entlang des Pfades in der Brillouin-Zone aus Abb. 5.9(c) dargestellt worden. In Abb. 5.17 ist der DSSF bei einer tiefen Temperatur $T \ll T_{KT}$ als Konturplot gezeigt. Für alle J' sind typische Signaturen eines Ferromagneten zu erkennen. Es sind lückenlose Goldstone-Magnonen

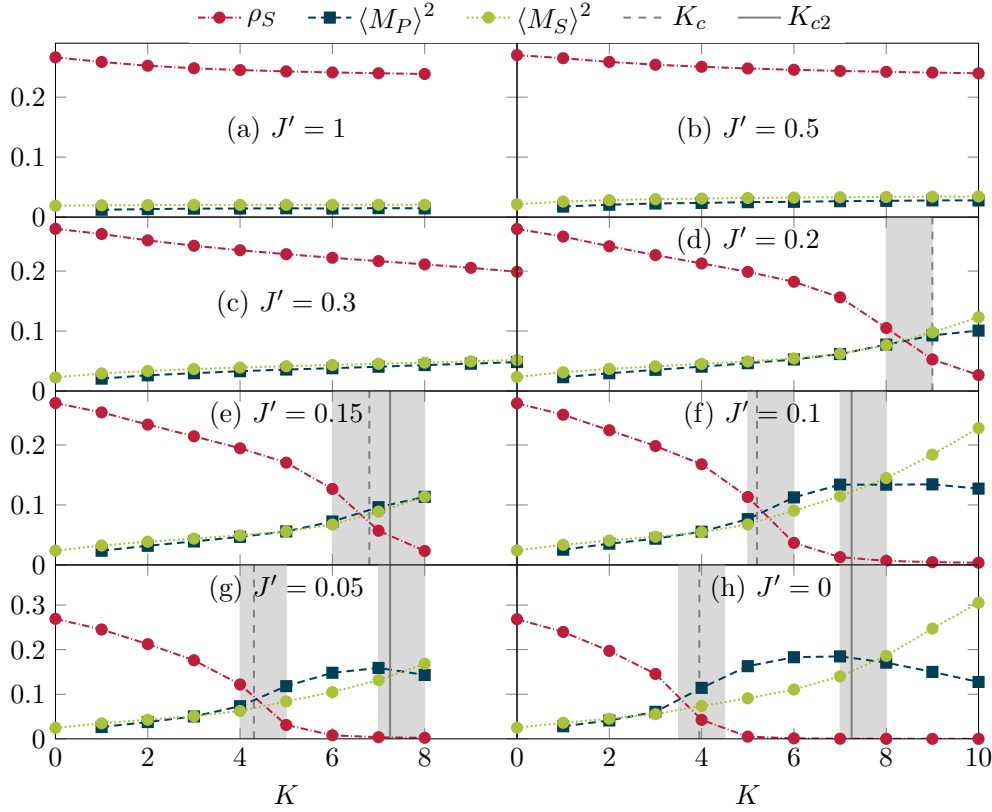


Abbildung 5.18.: Die drei Ordnungsparameter der superfluiden Phase ρ_S , der VBS-Phase $\langle M_S \rangle^2$ und der Néel-Phase $\langle M_P \rangle^2$ für verschiedene J' über K für $L = 16$ und $T = 0.2$. Die grauen Linien bzw. schattierten Bereiche zeigen den extrahierten Phasenübergang bzw. Fehler an.

zu sehen, die durch die LSWT gut beschrieben werden können. Das spektrale Gewicht ist beim Γ -Punkt dominant.

5.2.5. Quantenphasendiagramm

Im Grenzfall $J' = 0$ ist bekannt, dass das Modell drei verschiedene Phasen, die superfluide, die VBS- und die Néel-Phase, aufweist. Die dazugehörigen Ordnungsparameter, ρ_S , $\langle M_S \rangle^2$ und $\langle M_P \rangle^2$, sind für die Systemgröße $L = 16$ in Abb. 5.18 gezeigt. Da die vorhandenen Systemgrößen nicht ausreichen, um ein Finite-Size-Scaling durchzuführen, wird hier der Phasenübergang aus den Schnittpunkten der drei Ordnungsparameter ermittelt. Diese Methode zeigt den Phasenübergang in dem Grenzfall $J' = 0$ in Abb. 5.18(h) passend zu den Ergebnissen aus Ref. [261]. Unter Betrachtung der Maxima kann für $J' \geq 0$ der Verlauf der Phasenlinien untersucht werden. Wie auch in Ref. [216]

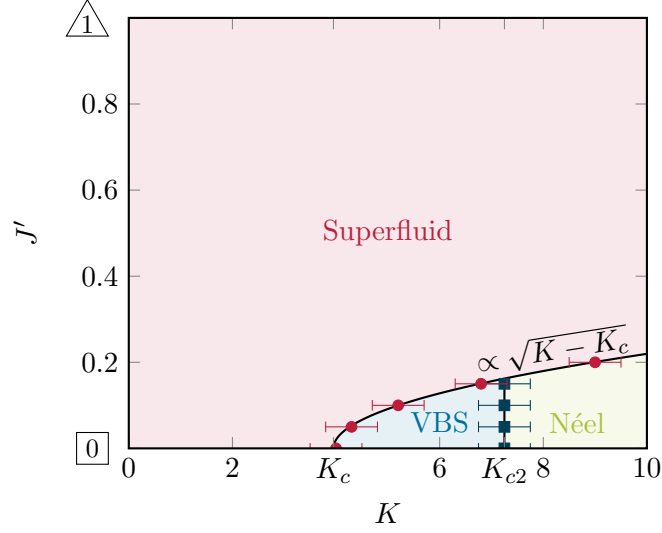


Abbildung 5.19.: Skizze des Quantenphasendiagramms. Die untere Linie zeigt den Grenzfal des Quadratgitters mit Ringaustausch. Dort ist der quantenkritische Punkt bei $K_c \approx 3.95$ zwischen der superfluiden und der VBS-Phase, welcher durch ein Verschwinden der Spinsteifigkeit charakterisiert wird. Ein Phasenübergang erster Ordnung bei $K_{c2} \approx 7.25$ führt in die Néel-Phase. Die obere Linie zeigt den Grenzfal des Dreiecksgitters mit Ringaustausch und weist keinen Phasenübergang auf.

ist für den Grenzfal $J' = \triangleup$ kein Phasenübergang aus der superfluiden Phase zu erkennen.

In Abb. 5.19 ist das Quantenphasendiagramm aus den Maxima der Ordnungsparameter gezeigt. Die Phasenlinie, die die superfluide Phase von den beiden anderen Phasen trennt, ist durch eine Wurzel-Funktion modelliert

$$J'_{\text{SF}}(K) \geq \frac{\sqrt{K - K_c}}{K_c + K_{c2}}. \quad (5.51)$$

Mit dieser Modellierung der Phasenlinie lässt sich für $K \sim \mathcal{O}(10^2)$ ein Phasenübergang im Dreiecksgitter extrapolieren. Der Phasenübergang zwischen der SF- und VBS-Phase liegt bei $K_c \approx 3.95$ [261] im Grenzfal $J' = \square$. Ein Übergang im Grenzfal $J' = \triangleup$ kann aufgrund des Ringaustauschbereichs $0 \leq K \leq 10$ nicht näher verifiziert werden. Der Phasenübergang zwischen der VBS- und Néel-Phase ist aus der Abb. 5.18 zum konstanten Wert $K_{c2} \approx 7.25$ [261] festgelegt.

5.2.6. Zusammenfassung

Zusammenfassend wurde der Übergang des frustrierten planaren XY-Spin-1/2-Ferromagneten mit Ringaustausch vom Quadrat- zum Dreiecksgitter in Abhängigkeit der Anisotropie des nächsten-Nachbar-Austausches untersucht. Das Quantenphasendiagramm besteht aus einer superfluiden, einer VBS- und einer Néel-Phase. Dieses konnte vom Grenzfall des Quadratgitters mit der Einführung einer Anisotropie fortgesetzt werden. Für den anderen Grenzfall des Dreiecksgitters konnte im Bereich $K \leq 10$ kein Phasenübergang gefunden werden, jedoch lässt sich durch die Extrapolation der Phasenlinie ein Phasenübergang in der Größenordnung $K \sim \mathcal{O}(10^2)$ vermuten. In der superfluiden Phase ist die lineare Spinwellentheorie eine akzeptable Beschreibung der elementaren Anregungen.

In dieser Arbeit wurden die statischen und dynamischen Eigenschaften von null-, ein- und zweidimensionalen Spinsystemen mit der QMC-Methode untersucht. Ausgehend von einem nulldimensionalen Nanosystem, hier ein antiferromagnetischer Heisenberg-Würfel, wurde der Übergang vom Quanten- zum klassischen Verhalten für verschiedene Kantenlängen des Würfels diskutiert. Außerdem wurden eindimensionale Spinketten untersucht. Hierbei wurde die alternierende ferro-antiferromagnetische Spin-1/2-Kette und die anisotrope Spin-1-Kette bei endlichen Temperaturen untersucht. Weiterhin wurden zweidimensionale XY-Modelle mit Ringaustausch behandelt. Zuerst wurde dabei das trimerisierte Kagome-Gitter untersucht und der Phasenübergang in eine Quantenspinflüssigkeitsphase untersucht. Danach wurde das Quantenphasendiagramm eines anisotropen Quadratgitters mit Ringaustausch betrachtet, welches im Grenzfall durch ein XY-Modell auf dem Dreiecksgitter mit Ringaustausch beschrieben werden konnte.

Die dafür verwendete QMC-Methode und die analytische Fortsetzung der imaginärzeitlichen Daten mithilfe der Maximum-Entropie-Methode und des Bryan-Algorithmus wurden in Kapitel 2 beschrieben. Die Hauptarbeit war die Erweiterung der QMC durch eine Ringaustauschwechselwirkung zwischen vier Spins und deren Anwendung auf verschiedene XY-Modelle ohne ein Vorzeichenproblem, welche als Plaquette-SSE bezeichnet wird. Die Implementierung der Plaquette-SSE basierte dabei auf der Ref. [97]. Im Rahmen dieser Arbeit konnte eine Anwendung dieser Methode auf anisotrope Austauschwechselwirkungen realisiert werden. Außerdem wurde parallel zu Ref. [232, 233] eine Messung des dynamischen Strukturfaktors innerhalb der Plaquette-SSE umgesetzt. In Zukunft ermöglicht die implementierte Methode die Untersuchung der statischen und dynamischen Eigenschaften von XY-Modellen mit Ringaustausch. Eine Untersuchung weiterer Modelle mit externen Magnetfeldern oder weiteren Austauschanisotropien ist möglich und stellt ein interessantes Forschungsfeld für die Zukunft dar.

Zuerst wurden in Kapitel 3 die statischen Eigenschaften des **antiferromagnetischen Spin-1/2-Würfels** in Abhängigkeit der Kantenlänge untersucht. Dabei wurde der Einfluss der Systemgröße auf die magnetischen Eigenschaften und einen Übergang vom

Quanten- zu klassischen Verhalten diskutiert. Die lineare Spinwellentheorie auf endlichen Gittern stimmt mit den Ergebnissen der QMC-Simulationen für die innere Energie überein und skaliert entsprechend einer störungstheoretischen Betrachtung mit der Systemgröße. Die Magnetisierung zeigte bei tiefen Temperaturen das Auftreten von Magnetisierungsstufen über dem angelegten Magnetfeld für kleine Systemgrößen, welche das Quantenverhalten widerspiegeln. Hierbei konnte der klassische Grenzfall, also großer Systeme und hoher Temperaturen, durch Ergebnisse der linearen Spinwellentheorie beschrieben werden. Im thermodynamischen Limes hat die spezifische Wärme einen Peak bei der kritischen Temperatur und damit kann das Phasendiagramm ermittelt werden. Der Verlauf des Peaks bei endlichen Systemen zeigte bereits für kleine Systeme $L \geq 4$ einen ähnlichen Verlauf. Es hat sich gezeigt, dass bereits in Systemen mit einer Kantenlänge von $L \geq 6$, die sich in eine reale Raumlänge von mehr als 1 nm umrechnen lässt, das Quantenverhalten nicht mehr sehr ausgeprägt ist.

Danach wurde in Kapitel 4 die Spindynamik bei endlichen Temperaturen in Heisenberg-Ketten untersucht. Zuerst wurde in Abschnitt 4.1 die **alternierende ferro- und antiferromagnetische Spin-1/2 Heisenberg-Kette** betrachtet. Die beiden Grenzfälle der Austauschwechselwirkungen j , einerseits schwach gekoppelte Dimere und andererseits eine effektive Haldane-Kette, wurden studiert. Eine Störungstheorie niedrigster Ordnung für ein dispersives Triplongas konnte bis $j \sim 1$ die Ergebnisse der statischen und dynamischen QMC gut beschreiben. Die statische QMC wurde zur Berechnung der Suszeptibilität über der Temperatur für verschiedene Austauschwechselwirkungen verwendet. Mithilfe der dynamischen QMC konnte der dynamische Strukturfaktor für endliche Temperaturen und verschiedene Austauschwechselwirkungen ermittelt werden. Dieses Modell weist in beiden Grenzfällen eine Spinlücke auf, deshalb wurde der Verlauf der Spinlücke in Abhängigkeit von j untersucht. Die Spinlücke wurde dabei aus der Suszeptibilität und dem dynamischen Strukturfaktor im Tieftemperaturbereich extrahiert. Analog zur Haldane-Kette konnte die Temperaturabhängigkeit des Maximums des dynamischen Strukturfaktors durch Ergebnisse des nichtlinearen σ -Modells beschrieben werden. Für $j \gtrsim 10$ konnte das Verhalten der effektiven Haldane-Kette durch eine asymptotische Spinlücke bestätigt werden, die um den Faktor 4 im Vergleich zur konventionellen Haldane-Lücke reduziert wird. Während sich hier auf periodische Randbedingungen konzentriert wurde, können offene Ketten mithilfe der QMC untersucht werden. Dies würde es erlauben, die Eigenschaften der topologischen Randzustände über j und der Temperatur zu beobachten. Im Hinblick auf die vorhandenen Materialien, $\text{C}_{29}\text{H}_{18}\text{F}_{12}\text{N}_5\text{O}_4\text{Zn}$ [150] und $\text{BaCu}_2\text{V}_2\text{O}_8$ [175], wären realistischere dynamische QMC-Berechnungen, einschließlich Zwischen-Ketten-Austausch, wünschenswert.

In Abschnitt 4.2 wurde die **anisotrope antiferromagnetische Spin-1-Heisenberg-Kette** diskutiert. Das Modell wurde für zwei Anisotropien $\Delta = 1$ und 1.5 untersucht. Für diese Anisotropien wird das Modell in einer Haldane- bzw. Néel-Phase beschrieben. In diesen Phasen konnte das Verhalten der Intensitätsverteilung im dynamischen Strukturfaktor bestimmt werden. Für endliche Temperaturen wurde dabei eine sehr gute Übereinstimmung zwischen der dynamischen Quanten-Typikalität und QMC-Simulationen gefunden. Vielversprechende Forschungsrichtungen sind z. B. die Untersuchung der Spindyn-

namik für $S \geq 1$ bei endlicher Temperatur, und insbesondere eine detailliertere Analyse des Vielteilchenlokalisierungsübergangs bei Modellen mit $S \geq 1$.

Zuletzt wurden in Kapitel 5 planare XY-Ferromagnete mit Ringaustausch untersucht. Dabei wurde zuerst in Abschnitt 5.1 der planare trimerisierte **XY-Ferromagnet auf dem Kagome-Gitter** mit Ringaustausch beleuchtet. Unterhalb eines kritischen Ringaustausches ist das Modell in einer superfluiden Phase und oberhalb in einer \mathbb{Z}_2 -Quantenspinflüssigkeitsphase. Aus der linearen Spinwellentheorie in der superfluiden Phase wurde eine Skalierung der Austauschparameter gefunden, die das isotrope Modell nahezu invariant bezüglich der Trimerisierung macht. Dies zeigte sich im Skalenverhalten der 3D XY*-Universalitätsklasse und im statischen Spin-Strukturfaktor. Für das Skalenverhalten wurde die Spinsteifigkeit im Tieftemperaturbereich in Abhängigkeit des Ringaustausches untersucht. Dafür wurde die endliche Spinsteifigkeit eines einzelnen Trimers analytisch bestimmt. Damit konnte eine Temperatur im Tieftemperaturbereich unter Berücksichtigung der Trimerisierung festgelegt werden, die das Skalenverhalten bei $T = 0$ widerspiegelt. Der Einfluss der Trimerisierung auf die Anregungen in der superfluiden Phase konnte durch die lineare Spinwellentheorie gut beschrieben werden. Das spektrale Gewicht der Spinon-Kontinua ist für das trimerisierte Modell in der Quantenspinflüssigkeitsphase über die ganze Brillouin-Zone verteilt. Offene Fragen bleiben bezüglich des nicht-monotonen Verhaltens der Spinsteifigkeit mit Ringaustausch bei starker Trimerisierung. Dies könnte einen neuen Typ von Grundzuständen signalisieren. Im Hinblick auf tatsächliche Realisierungen in optischen Gittern wurde gezeigt, dass die Trimerisierung die QSL-Phase vergrößert.

In Abschnitt 5.2 wurde der Übergang des anisotropen planaren **XY-Ferromagneten vom Quadrat- zum Dreiecksgitter** mit Ringaustausch untersucht. Das Modell kann in einem Grenzfall durch ein Quadratgitter mit Ringaustausch und im anderen Grenzfall durch ein Dreiecksgitter mit Ringaustausch beschrieben werden. Das Quantenphasendiagramm dieser beiden Grenzfälle war bekannt. Das System besitzt im Grenzfall des Quadratgitters drei Phasen, eine langreichweitige superfluide, eine VBS- und eine Néel-Phase. Im Grenzfall des Dreiecksgitters wurde kein Phasenübergang aus der superfluiden Phase vorhergesagt. Zur Untersuchung des kombinierten Quantenphasendiagramms dieser beiden Modelle wurden die Ordnungsparameter, wie die Spinsteifigkeit, der longitudinale statische Spin- und der statische Plaquette-Strukturfaktor berechnet. Der Verlauf des Phasenübergangs aus der superfluiden Phase konnte mit den Ergebnissen modelliert werden und damit einen Phasenübergang für einen großen Ringaustausch auf dem Dreiecksgitter extrapolieren. Zur Bestätigung eines Phasenübergangs wären Simulationen für größere Ringaustauschwechselwirkungen und Systemgrößen als in dieser Arbeit notwendig. Der transversale dynamische Strukturfaktor zeigte die elementaren Anregungen der superfluiden Phase, die durch die lineare Spinwellentheorie qualitativ beschrieben werden konnten. Zur Verifizierung des Quantenphasendiagramms wäre in Zukunft eine Untersuchung der Skalierung der Ordnungsparameter mit der Systemgröße wünschenswert. Außerdem ist eine Untersuchung der elementaren Anregungen in der VBS- und Néel-Phase von Interesse.

Alles in allem stellt diese Arbeit numerische Resultate zur Verfügung, die als Basis für zukünftige Untersuchungen von Quantenspinsystemen dient. Allgemein konnte in den letzten Jahren das Verständnis der Thermodynamik und der Anregungen in verschiedenen Quantenphasen verbessert werden, wobei viele wichtige Fragen noch nicht vollständig geklärt sind. Insbesondere ist eine realistische Modellierung von Materialien erforderlich. Die große Anzahl offener Fragen auf dem Gebiet der Quantenspinsysteme, die sich sowohl aus der Theorie als auch aus dem Experiment ergeben, garantiert, dass diesem Bereich der Physik auch in Zukunft mit großer Wahrscheinlichkeit viel Aufmerksamkeit geschenkt werden wird.



Literaturverzeichnis

- [R1] N. Casper und W. Brenig, Phys. Rev. B **103**, 094434 (2021).
- [R2] N. Casper und W. Brenig, arXiv:2001.04696 (2020).
- [R3] J. Richter, N. Casper, W. Brenig, und R. Steinigeweg, Phys. Rev. B **100**, 144423 (2019).
- [R4] N. Casper, Masterarbeit, Technische Universität Braunschweig (2016).
- [R5] N. Casper, Bachelorarbeit, Technische Universität Braunschweig (2014).
- [6] All nobel prizes in physics, <https://www.nobelprize.org/prizes/lists/all-nobel-prizes-in-physics/>, abgerufen am: 16.09.2021.
- [7] A. Wang und W. D. Woo, J. Appl. Phys. **21**, 49 (1950).
- [8] J. W. Forrester, J. Appl. Phys. **22**, 44 (1951).
- [9] I. Žutić, J. Fabian, und S. Das Sarma, Rev. Mod. Phys. **76**, 323 (2004).
- [10] G. E. W. Bauer, E. Saitoh, und B. J. van Wees, Nat. Mater. **11**, 391 (2012).
- [11] D. Inosov, Adv. Phys. **67**, 149 (2018).
- [12] M. L. Wall, K. R. A. Hazzard, und A. M. Rey, Quantum magnetism with ultracold molecules, in *From Atomic to Mesoscale* (World Scientific, 2015) Kap. 1, S. 3–37.
- [13] M. N. Leuenberger und D. Loss, Nature **410**, 789 (2001).
- [14] J. Hubbard und B. H. Flowers, Proc. R. Soc. Lond. A **276**, 238 (1963).
- [15] W. Heisenberg, Z. Physik **49**, 619 (1928).
- [16] I. Dzyaloshinsky, J. Phys. Chem. Solids **4**, 241 (1958).
- [17] T. Moriya, Phys. Rev. **120**, 91 (1960).
- [18] D. J. Thouless, Proc. Phys. Soc. **86**, 893 (1965).

- [19] M. Roger, J. H. Hetherington, und J. M. Delrieu, *Rev. Mod. Phys.* **55**, 1 (1983).
- [20] M. Roger, C. Bäuerle, Y. M. Bunkov, A.-S. Chen, und H. Godfrin, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 1308 (1998).
- [21] G. Misguich, B. Bernu, C. Lhuillier, und C. Waldtmann, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 1098 (1998).
- [22] O. I. Motrunich, *Phys. Rev. B* **72**, 045105 (2005).
- [23] H. P. Büchler, M. Hermele, S. D. Huber, M. P. A. Fisher, und P. Zoller, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 040402 (2005).
- [24] Y. Nambu, *Prog. Theor. Phys.* **5**, 1 (1950).
- [25] E. Lieb, T. Schultz, und D. Mattis, *Ann. Physics* **16**, 407 (1961).
- [26] E. Ising, *Z. Physik* **31**, 253 (1925).
- [27] L. D. Landau, *Phys. Z. Sowjetunion* **11**, 26 (1937).
- [28] V. L. Ginzburg und L. D. Landau, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **20**, 1064 (1950).
- [29] T. Kennedy, E. H. Lieb, und B. S. Shastry, *J. Stat. Phys.* **53**, 1019 (1988).
- [30] F. J. Dyson, E. H. Lieb, und B. Simon, *J. Stat. Phys.* **18**, 335 (1978).
- [31] W. Marshall, *Proc. R. Soc. Lond. A* **232**, 48 (1955).
- [32] E. Lieb und D. Mattis, *J. Math. Phys.* **3**, 749 (1962).
- [33] N. D. Mermin und H. Wagner, *Phys. Rev. Lett.* **17**, 1133 (1966).
- [34] F. Haldane, *Phys. Lett. A* **93**, 464 (1983).
- [35] I. Affleck, T. Kennedy, E. H. Lieb, und H. Tasaki, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 799 (1987).
- [36] M. den Nijs und K. Rommelse, *Phys. Rev. B* **40**, 4709 (1989).
- [37] S. R. White und D. A. Huse, *Phys. Rev. B* **48**, 3844 (1993).
- [38] X. G. Wen, *Phys. Rev. B* **40**, 7387 (1989).
- [39] X. G. Wen, *Internat. J. Modern Phys. B* **04**, 239 (1990).
- [40] A. P. Ramirez, *Annu. Rev. Mater. Sci.* **24**, 453 (1994).
- [41] C. Lacroix, P. Mendels, und F. Mila, Hrsgg., *Introduction to Frustrated Magnetism* (Springer, Berlin, Heidelberg, 2011).
- [42] P. Anderson, *Mater. Res. Bull.* **8**, 153 (1973).
- [43] L. Pauling, *Phys. Rev.* **54**, 899 (1938).
- [44] L. C. Pauling, *Proc. R. Soc. Lond. A* **196**, 343 (1949).

- [45] L. Pauling, Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. **60**, 59 (1968).
- [46] L. Pauling, J. Solid State Chem. **54**, 297 (1984).
- [47] L. Balents, Nature **464**, 199 (2010).
- [48] Y. Zhou, K. Kanoda, und T.-K. Ng, Rev. Mod. Phys. **89**, 025003 (2017).
- [49] J. Knolle und R. Moessner, Annu. Rev. Condens. Matter Phys. **10**, 451 (2019).
- [50] C. Broholm, R. J. Cava, S. A. Kivelson, D. G. Nocera, M. R. Norman, und T. Senthil, Science **367**, 6475 (2020).
- [51] N. Read und S. Sachdev, Phys. Rev. Lett. **66**, 1773 (1991).
- [52] X. G. Wen, Phys. Rev. B **44**, 2664 (1991).
- [53] N. S. Headings, S. M. Hayden, R. Coldea, und T. G. Perring, Phys. Rev. Lett. **105**, 247001 (2010).
- [54] J. Goldstone, Il Nuovo Cimento **19**, 154 (1961).
- [55] J. Goldstone, A. Salam, und S. Weinberg, Phys. Rev. **127**, 965 (1962).
- [56] F. Bloch, Z. Phys. **61**, 206 (1930).
- [57] C. Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (Oldenbourg Wissenschaftsverlag, München, 2013).
- [58] T. Holstein und H. Primakoff, Phys. Rev. **58**, 1098 (1940).
- [59] F. J. Dyson, Phys. Rev. **102**, 1217 (1956).
- [60] S. R. White und I. Affleck, Phys. Rev. B **77**, 134437 (2008).
- [61] G. Xu, G. Aeppli, M. E. Bisher, C. Broholm, J. F. DiTusa, C. D. Frost, T. Ito, K. Oka, R. L. Paul, H. Takagi, und M. M. J. Treacy, Science **289**, 419 (2000).
- [62] M. Mourigal, M. Enderle, A. Klöpperpieper, J.-S. Caux, A. Stunault, und H. M. Rønnow, Nat. Phys. **9**, 435 (2013).
- [63] J. Wen, S.-L. Yu, S. Li, W. Yu, und J.-X. Li, npj Quantum Materials **4**, 12 (2019).
- [64] Y. Shen, Y.-D. Li, H. Wo, Y. Li, S. Shen, B. Pan, Q. Wang, H. C. Walker, P. Steffens, M. Boehm, Y. Hao, D. L. Quintero-Castro, L. W. Harriger, M. D. Frontzek, L. Hao, S. Meng, Q. Zhang, G. Chen, und J. Zhao, Nature **540**, 559 (2016).
- [65] Y. Shimizu, K. Miyagawa, K. Kanoda, M. Maesato, und G. Saito, Phys. Rev. Lett. **91**, 107001 (2003).
- [66] K. Kanoda und R. Kato, Annu. Rev. Condens. Matter Phys. **2**, 167 (2011).
- [67] M. R. Norman, Rev. Mod. Phys. **88**, 041002 (2016).
- [68] H. Bethe, Z. Physik **71**, 205 (1931).

- [69] C. Lanczos, J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol. **45**, 255 (1950).
- [70] A. C. Tiegel, A. Honecker, T. Pruschke, A. Ponomaryov, S. A. Zvyagin, R. Feyersherm, und S. R. Manmana, Phys. Rev. B **93**, 104411 (2016).
- [71] S. Lloyd, Doktorarbeit, Rockefeller University (1988), Kapitel 3, arXiv:1307.0378.
- [72] J. Gemmer, M. Michel, und G. Mahler, *Quantum Thermodynamics* (Springer, Berlin, Heidelberg, 2004).
- [73] S. Popescu, A. J. Short, und A. Winter, Nat. Phys. **2**, 754 (2006).
- [74] S. Goldstein, J. L. Lebowitz, R. Tumulka, und N. Zanghì, Phys. Rev. Lett. **96**, 050403 (2006).
- [75] P. Reimann, Phys. Rev. Lett. **99**, 160404 (2007).
- [76] A. Hams und H. De Raedt, Phys. Rev. E **62**, 4365 (2000).
- [77] T. Iitaka und T. Ebisuzaki, Phys. Rev. Lett. **90**, 047203 (2003).
- [78] S. Sugiura und A. Shimizu, Phys. Rev. Lett. **111**, 010401 (2013).
- [79] T. A. Elsayed und B. V. Fine, Phys. Rev. Lett. **110**, 070404 (2013).
- [80] T. Monnai und A. Sugita, J. Phys. Soc. Jpn. **83**, 094001 (2014).
- [81] R. Steinigeweg, J. Gemmer, und W. Brenig, Phys. Rev. Lett. **112**, 120601 (2014).
- [82] S. R. White, Phys. Rev. Lett. **69**, 2863 (1992).
- [83] U. Schollwöck, Rev. Mod. Phys. **77**, 259 (2005).
- [84] U. Schollwöck, Ann. Phys. **326**, 96 (2011).
- [85] Y.-C. He, M. P. Zaletel, M. Oshikawa, und F. Pollmann, Phys. Rev. X **7**, 031020 (2017).
- [86] F. Verstraete und J. I. Cirac, arXiv:cond-mat/0407066 (2004).
- [87] A. W. Sandvik und J. Kurkijärvi, Phys. Rev. B **43**, 5950 (1991).
- [88] A. W. Sandvik, Phys. Rev. B **59**, R14157 (1999).
- [89] A. W. Sandvik, Phys. Rev. B **56**, 11678 (1997).
- [90] S. Chandrasekharan und U.-J. Wiese, Phys. Rev. Lett. **83**, 3116 (1999).
- [91] D. C. Handscomb, Math. Proc. Cambridge Philos. Soc. **58**, 594 (1962).
- [92] O. F. Syljuåsen und A. W. Sandvik, Phys. Rev. E **66**, 046701 (2002).
- [93] S. N. Grossjohann, *Static and Dynamic Properties of Low Dimensional Quantum Spin Systems, Dissertation, Technische Universität Braunschweig* (Cuvillier Verlag, Göttingen, 2010).

- [94] Y. Rahnavard, *Transport and dynamics of low-dimensional quantum spin systems*, Doktorarbeit, Technische Universität Braunschweig (2014).
- [95] B. Willenberg, Diplomarbeit, Technische Universität Braunschweig (2009).
- [96] N. Metropolis, A. W. Rosenbluth, M. N. Rosenbluth, A. H. Teller, und E. Teller, J. Chem. Phys. **21**, 1087–1092 (1953).
- [97] R. G. Melko und A. W. Sandvik, Phys. Rev. E **72**, 026702 (2005).
- [98] U. Wolff, Phys. Rev. Lett. **62**, 361 (1989).
- [99] R. H. Swendsen und J.-S. Wang, Phys. Rev. Lett. **58**, 86 (1987).
- [100] A. Cuccoli, T. Roscilde, V. Tognetti, R. Vaia, und P. Verrucchi, Phys. Rev. B **67**, 104414 (2003).
- [101] E. L. Pollock und D. M. Ceperley, Phys. Rev. B **36**, 8343 (1987).
- [102] K. Harada und N. Kawashima, J. Phys. Soc. Jpn. **67**, 2768 (1998).
- [103] N. Kawashima, J. E. Gubernatis, und H. G. Evertz, Phys. Rev. B **50**, 136 (1994).
- [104] A. W. Sandvik, J. Phys. A **25**, 3667 (1992).
- [105] K. S. D. Beach, arXiv:cond-mat/0403055 (2004).
- [106] A. W. Sandvik, Phys. Rev. B **57**, 10287 (1998).
- [107] E. Pavarini, E. Koch, F. Anders, und M. Jarell, *Correlated electrons: from models to materials lecture notes of the Autumn School Correlated Electrons 2012 at Forschungszentrum Jülich, 3 - 7 September 2012* (Forschungszentrum Jülich, Zentralbibliothek, Verl, Jülich, 2012).
- [108] A. N. Tikhonov, *Solutions of ill-posed problems* (Halsted Press, Washington, New York, 1977).
- [109] M. Jarrell und J. Gubernatis, Phys. Rep. **269**, 133 (1996).
- [110] J. Skilling, *Maximum entropy and Bayesian methods* (Springer Science+Business Media, Dordrecht, 1989).
- [111] T. Bayes und R. Price, Phil. Trans. R. Soc. **53**, 370 (1763).
- [112] R. Bryan, Eur. Biophys. J. **18**, 165–174 (1990).
- [113] J. E. Gubernatis, M. Jarrell, R. N. Silver, und D. S. Sivia, Phys. Rev. B **44**, 6011–6029 (1991).
- [114] S. F. Gull und G. J. Daniell, Nature **272**, 686–690 (1978).
- [115] J. Skilling und R. K. Bryan, Mon. Not. R. Astron. Soc. **211**, 111 (1984).
- [116] S. Meshkov und D. Berkov, Int. J. Mod. Phys. C **05**, 987–995 (1994).

- [117] J. Schnack, Phys. Rev. B **93**, 054421 (2016).
- [118] T. Yoshida, Y. Matsugi, N. Tsujimura, T. Sasayama, K. Enpuku, T. Viereck, M. Schilling, und F. Ludwig, J. Magn. Magn. Mater. **427**, 162 (2017).
- [119] F. Ludwig, C. Balceris, T. Viereck, O. Posth, U. Steinhoff, H. Gavilan, R. Costo, L. Zeng, E. Olsson, C. Jonasson, und C. Johansson, J. Magn. Magn. Mater. **427**, 19 (2017).
- [120] Q. A. Pankhurst, N. T. K. Thanh, S. K. Jones, und J. Dobson, J. Phys. D: Appl. Phys. **42**, 224001 (2009).
- [121] K. M. Krishnan, IEEE Trans. Magn. **46**, 2523 (2010).
- [122] F. Ludwig, C. Kuhlmann, T. Wawrzik, J. Dieckhoff, A. Lak, A. P. Kandhar, R. M. Ferguson, S. J. Kemp, und K. M. Krishnan, IEEE Trans. Magn. **50**, 1 (2014).
- [123] T. Viereck, C. Kuhlmann, S. Draack, M. Schilling, und F. Ludwig, J. Magn. Magn. Mater. **427**, 156 (2017).
- [124] P. Moustanis und S. Thanos, Phys. B **202**, 65 (1994).
- [125] J. Strečka und J. Čisárová, Acta Phys. Pol. A **126**, 26 (2014).
- [126] N. Blanc, J. Trinh, L. Dong, X. Bai, A. A. Aczel, M. Mourigal, L. Balents, T. Siegrist, und A. P. Ramirez, Nat. Phys. **14**, 273 (2018).
- [127] L. S. Wu, Y. Janssen, C. Marques, M. C. Bennett, M. S. Kim, K. Park, S. Chi, J. W. Lynn, G. Lorusso, G. Biasiol, und M. C. Aronson, Phys. Rev. B **84**, 134409 (2011).
- [128] Z. He, W. Zhang, T. Xia, W. Yu, und W. Cheng, Dalton Trans. **42**, 5480 (2013).
- [129] D. Pinkowicz, M. Rams, W. Nitek, B. Czarnecki, und B. Sieklucka, Chem. Commun. **48**, 8323 (2012).
- [130] R. S. Freitas, A. Paduan-Filho, und C. C. Becerra, J. Phys. Condens. Matter **28**, 126007 (2016).
- [131] A. W. Sandvik, Phys. Rev. Lett. **80**, 5196 (1998).
- [132] M. Mourigal, M. E. Zhitomirsky, und A. L. Chernyshev, Phys. Rev. B **82**, 144402 (2010).
- [133] E. Manousakis, Rev. Mod. Phys. **63**, 1 (1991).
- [134] M. E. Zhitomirsky und T. Nikuni, Phys. Rev. B **57**, 5013 (1998).
- [135] M. Takahashi, Phys. Rev. B **40**, 2494 (1989).
- [136] J. E. Hirsch und S. Tang, Phys. Rev. B **40**, 4769 (1989).
- [137] J. G. Valatin, Nuovo Cim. **7**, 843 (1958).

- [138] N. N. Bogoljubov, *Nuovo Cim.* **7**, 794 (1958).
- [139] P. Hasenfratz und F. Niedermayer, *Z. Phys. B* **92**, 91 (1993).
- [140] Y. Shapira und V. Bindilatti, *J. Appl. Phys.* **92**, 4155 (2002).
- [141] A. Honecker, Habilitation, Technische Universität Braunschweig (2003).
- [142] H. Tasaki, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 798 (1991).
- [143] J. J. Borrás-Almenar, J. M. Clemente-Juan, E. Coronado, und F. Lloret, *Chem. Phys. Lett.* **275**, 79 (1997).
- [144] S. Watanabe und H. Yokoyama, *J. Phys. Soc. Jpn.* **68**, 2073 (1999).
- [145] K. Hida, *Phys. Rev. B* **45**, 2207 (1992).
- [146] T. Sakai, *J. Phys. Soc. Jpn.* **64**, 251 (1995).
- [147] S. Kokado und N. Suzuki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **68**, 3091 (1999).
- [148] Paul und Ghosh, *Condens. Matter Phys.* **20**, 23701 (2017).
- [149] Y.-Z. Wu und Z.-Y. Li, *Phys. Status Solidi B* **213**, 27 (1999).
- [150] H. Yamaguchi, Y. Shimpuku, T. Shimokawa, K. Iwase, T. Ono, Y. Kono, S. Kittaka, T. Sakakibara, und Y. Hosokoshi, *Phys. Rev. B* **91**, 085117 (2015).
- [151] S. S. Aplesnin und G. A. Petrakovskii, *Phys. Solid State* **41**, 1511 (1999).
- [152] W. J. L. Buyers, R. M. Morra, R. L. Armstrong, M. J. Hogan, P. Gerlach, und K. Hirakawa, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 371 (1986).
- [153] M. Steiner, K. Kakurai, J. K. Kjems, D. Petitgrand, und R. Pynn, *J. Appl. Phys.* **61**, 3953 (1987).
- [154] J. P. Renard, M. Verdaguer, L. P. Regnault, W. A. C. Erkelens, J. Rossat-Mignod, und W. G. Stirling, *EPL* **3**, 945 (1987).
- [155] J. P. Renard, M. Verdaguer, L. P. Regnault, W. A. C. Erkelens, J. Rossat-Mignod, J. Ribas, W. G. Stirling, und C. Vettier, *J. Appl. Phys.* **63**, 3538 (1988).
- [156] L. P. Regnault, I. Zaliznyak, J. P. Renard, und C. Vettier, *Phys. Rev. B* **50**, 9174 (1994).
- [157] M. Orendáč, A. Orendáčová, J. Černák, A. Feher, P. J. C. Signore, M. W. Meisel, S. Merah, und M. Verdaguer, *Phys. Rev. B* **52**, 3435 (1995).
- [158] M. Takigawa, T. Asano, Y. Ajiro, M. Mekata, und Y. J. Uemura, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 2173 (1996).
- [159] G. Xu, J. F. DiTusa, T. Ito, K. Oka, H. Takagi, C. Broholm, und G. Aeppli, *Phys. Rev. B* **54**, R6827 (1996).

- [160] Z. Honda, H. Asakawa, und K. Katsumata, Phys. Rev. Lett. **81**, 2566 (1998).
- [161] A. Zheludev, Y. Chen, C. L. Broholm, Z. Honda, und K. Katsumata, Phys. Rev. B **63**, 104410 (2001).
- [162] G. Xu, C. Broholm, Y.-A. Soh, G. Aeppli, J. F. DiTusa, Y. Chen, M. Kenzelmann, C. D. Frost, T. Ito, K. Oka, und H. Takagi, Science **317**, 1049 (2007).
- [163] A. Niazi, S. L. Bud'ko, D. L. Schlagel, J. Q. Yan, T. A. Lograsso, A. Kreyssig, S. Das, S. Nandi, A. I. Goldman, A. Honecker, R. W. McCallum, M. Reehuis, O. Pieper, B. Lake, und D. C. Johnston, Phys. Rev. B **79**, 104432 (2009).
- [164] O. Pieper, B. Lake, A. Daoud-Aladine, M. Reehuis, K. Prokeš, B. Klemke, K. Kiefer, J. Q. Yan, A. Niazi, D. C. Johnston, und A. Honecker, Phys. Rev. B **79**, 180409 (2009).
- [165] M. Hagiwara, Y. Narumi, K. Kindo, T. C. Kobayashi, H. Yamakage, K. Amaya, und G. Schumacher, J. Phys. Soc. Jpn. **66**, 1792 (1997).
- [166] Y. Hosokoshi, Y. Nakazawa, K. Inoue, K. Takizawa, H. Nakano, M. Takahashi, und T. Goto, Phys. Rev. B **60**, 12924 (1999).
- [167] K. Kodama, T. Fukamachi, H. Harashina, M. Kanada, Y. Kobayashi, M. Kasai, H. Sasaki, M. Sato, und K. Kakurai, J. Phys. Soc. Jpn. **67**, 57 (1998).
- [168] K. Kodama, H. Harashina, H. Sasaki, M. Kato, M. Sato, K. Kakurai, und M. Nishi, J. Phys. Soc. Jpn. **68**, 237 (1999).
- [169] Y. Ajiro, K. Takeo, Y. Inagaki, T. Asano, A. Shimogai, M. Mito, T. Kawae, K. Takeda, T. Sakon, H. Nojiri, und M. Motokawa, Phys. B **329-333**, 1008 (2003).
- [170] M. B. Stone, W. Tian, M. D. Lumsden, G. E. Granroth, D. Mandrus, J.-H. Chung, N. Harrison, und S. E. Nagler, Phys. Rev. Lett. **99**, 087204 (2007).
- [171] Y. Inagaki, Y. Sakamoto, H. Morodomi, T. Kawae, Y. Yoshida, T. Asano, K. Hosoi, H. Kobayashi, H. Kitagawa, Y. Ajiro, und Y. Furukawa, J. Phys. Soc. Jpn. **83**, 054716 (2014).
- [172] Y. Miura, R. Hirai, Y. Kobayashi, und M. Sato, J. Phys. Soc. Jpn. **75**, 084707 (2006).
- [173] Y. Miura, Y. Yasui, T. Moyoshi, M. Sato, und K. Kakurai, J. Phys. Soc. Jpn. **77**, 104709 (2008).
- [174] C. Kuo, T. Jian, und C. Lue, J. Alloys Compd. **531**, 1 (2012).
- [175] E. S. Klyushina, A. T. M. N. Islam, J. T. Park, E. A. Goremychkin, E. Wheeler, B. Klemke, und B. Lake, Phys. Rev. B **98**, 104413 (2018).
- [176] R. Botet und R. Jullien, Phys. Rev. B **27**, 613 (1983).
- [177] M. P. Nightingale und H. W. J. Blöte, Phys. Rev. B **33**, 659 (1986).

- [178] H.-H. Hung und C.-D. Gong, Phys. Rev. B **71**, 054413 (2005).
- [179] B. Bauer, L. D. Carr, H. G. Evertz, A. Feiguin, J. Freire, S. Fuchs, L. Gamper, J. Gukelberger, E. Gull, S. Guertler, A. Hehn, R. Igarashi, S. V. Isakov, D. Koop, P. N. Ma, P. Mates, H. Matsuo, O. Parcollet, G. Pawłowski, J. D. Picon, L. Pollet, E. Santos, V. W. Scarola, U. Schollwöck, C. Silva, B. Surer, S. Todo, S. Trebst, M. Troyer, M. L. Wall, P. Werner, und S. Wessel, J. Stat. Mech: Theory Exp. **2011**, P05001 (2011).
- [180] A. J. A. James, F. H. L. Essler, und R. M. Konik, Phys. Rev. B **78**, 094411 (2008).
- [181] M. Troyer, H. Tsunetsugu, und D. Würtz, Phys. Rev. B **50**, 13515 (1994).
- [182] M. Abramowitz, *Handbook of mathematical functions: with formulas, graphs, and mathematical tables* (Dover Publications, New York, 1970).
- [183] K. Damle und S. Sachdev, Phys. Rev. B **57**, 8307 (1998).
- [184] M. Takahashi, Phys. Rev. Lett. **62**, 2313 (1989).
- [185] O. Golinelli, T. Jolicoeur, und R. Lacaze, J. Phys. Condens. Matter **5**, 1399 (1993).
- [186] Y. Rahnavard und W. Brenig, Phys. Rev. B **91**, 054405 (2015).
- [187] T. Jolicur und O. Golinelli, Phys. Rev. B **50**, 9265 (1994).
- [188] W. Chen, K. Hida, und B. C. Sanctuary, Phys. Rev. B **67**, 104401 (2003).
- [189] H.-J. Mikeska und A. K. Kolezhuk, One-dimensional magnetism, in *Quantum Magnetism*, herausgegeben von U. Schollwöck, J. Richter, D. J. J. Farnell, und R. F. Bishop (Springer, Berlin, Heidelberg, 2004) S. 1–83.
- [190] T. Prosen und E. Ilievski, Phys. Rev. Lett. **111**, 057203 (2013).
- [191] X. Zotos, Phys. Rev. Lett. **82**, 1764 (1999).
- [192] A. Urichuk, Y. Oez, A. Klümper, und J. Sirker, SciPost Phys. **6**, 5 (2019).
- [193] J. Sirker, R. G. Pereira, und I. Affleck, Phys. Rev. B **83**, 035115 (2011).
- [194] M. Žnidarič, Phys. Rev. Lett. **106**, 220601 (2011).
- [195] R. Steinigeweg und W. Brenig, Phys. Rev. Lett. **107**, 250602 (2011).
- [196] C. Karrasch, J. E. Moore, und F. Heidrich-Meisner, Phys. Rev. B **89**, 075139 (2014).
- [197] R. Steinigeweg, F. Jin, D. Schmidtke, H. De Raedt, K. Michielsen, und J. Gemmer, Phys. Rev. B **95**, 035155 (2017).
- [198] M. Ljubotina, M. Žnidarič, und T. Prosen, Nat. Commun. **8**, 16117 (2017).
- [199] S. Gopalakrishnan und R. Vasseur, Phys. Rev. Lett. **122**, 127202 (2019).

- [200] J. Richter und R. Steinigeweg, Phys. Rev. B **99**, 094419 (2019).
- [201] J. De Nardis, M. Medenjak, C. Karrasch, und E. Ilievski, Phys. Rev. Lett. **123**, 186601 (2019).
- [202] Y. Rahnavard, R. Steinigeweg, und W. Brenig, arXiv:1501.03447 (2015).
- [203] S. Grossjohann und W. Brenig, Phys. Rev. B **81**, 012404 (2010).
- [204] J. Becker, T. Köhler, A. C. Tiegel, S. R. Manmana, S. Wessel, und A. Honecker, Phys. Rev. B **96**, 060403 (2017).
- [205] V. L. Berezinskii, Sov. Phys. JETP **32**, 493 (1971).
- [206] J. M. Kosterlitz und D. J. Thouless, J. Phys. C Solid State Phys. **6**, 1181 (1973).
- [207] D. R. Nelson und J. M. Kosterlitz, Phys. Rev. Lett. **39**, 1201 (1977).
- [208] A. W. Sandvik, S. Daul, R. R. P. Singh, und D. J. Scalapino, Phys. Rev. Lett. **89**, 247201 (2002).
- [209] R. G. Melko, A. W. Sandvik, und D. J. Scalapino, Phys. Rev. B **69**, 100408 (2004).
- [210] A. Paramekanti, L. Balents, und M. P. A. Fisher, Phys. Rev. B **66**, 054526 (2002).
- [211] O. I. Motrunich und M. P. A. Fisher, Phys. Rev. B **75**, 235116 (2007).
- [212] L. Balents und A. Paramekanti, Phys. Rev. B **67**, 134427 (2003).
- [213] T. Momoi, K. Kubo, und K. Niki, Phys. Rev. Lett. **79**, 2081 (1997).
- [214] K. Kubo, H. Sakamoto, T. Momoi, und K. Niki, J. Low Temp. Phys. **111**, 583 (1998).
- [215] T. Momoi, H. Sakamoto, und K. Kubo, Phys. Rev. B **59**, 9491 (1999).
- [216] V. G. Rousseau, K. Hettiarachchilage, K.-M. Tam, M. Jarrell, und J. Moreno, Phys. Rev. B **94**, 144514 (2016).
- [217] L. Balents, M. P. A. Fisher, und S. M. Girvin, Phys. Rev. B **65**, 224412 (2002).
- [218] D. S. Rokhsar und S. A. Kivelson, Phys. Rev. Lett. **61**, 2376 (1988).
- [219] R. Moessner und S. L. Sondhi, Phys. Rev. Lett. **86**, 1881 (2001).
- [220] R. Moessner, S. L. Sondhi, und E. Fradkin, Phys. Rev. B **65**, 024504 (2001).
- [221] D. N. Sheng und L. Balents, Phys. Rev. Lett. **94**, 146805 (2005).
- [222] S. V. Isakov, Y. B. Kim, und A. Paramekanti, Phys. Rev. Lett. **97**, 207204 (2006).
- [223] S. V. Isakov, A. Paramekanti, und Y. B. Kim, Phys. Rev. B **76**, 224431 (2007).
- [224] L. Dang, S. Inglis, und R. G. Melko, Phys. Rev. B **84**, 132409 (2011).
- [225] S. V. Isakov, M. B. Hastings, und R. G. Melko, Nat. Phys. **7**, 772 (2011).

- [226] S. V. Isakov, R. G. Melko, und M. B. Hastings, *Science* **335**, 193 (2012).
- [227] F. J. Wegner, *J. Math. Phys.* **12**, 2259 (1971).
- [228] A. Kitaev, *Ann. Phys.* **303**, 2 (2003).
- [229] L. Savary und L. Balents, *Rep. Prog. Phys.* **80**, 016502 (2016).
- [230] S. Sachdev, *Rep. Prog. Phys.* **82**, 014001 (2018).
- [231] Y.-C. Wang, C. Fang, M. Cheng, Y. Qi, und Z. Y. Meng, *arXiv:1701.01552* (2017).
- [232] J. Becker und S. Wessel, *Phys. Rev. Lett.* **121**, 077202 (2018).
- [233] J. Becker und S. Wessel, *Phys. Rev. B* **100**, 241113 (2019).
- [234] A. V. Chubukov, T. Senthil, und S. Sachdev, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 2089 (1994).
- [235] A. V. Chubukov, S. Sachdev, und T. Senthil, *Nucl. Phys. B* **426**, 601 (1994).
- [236] T. Senthil und O. Motrunich, *Phys. Rev. B* **66**, 205104 (2002).
- [237] S. V. Isakov, T. Senthil, und Y. B. Kim, *Phys. Rev. B* **72**, 174417 (2005).
- [238] H. Ballesteros, L. Fernández, V. Martín-Mayor, und A. Muñoz Sudupe, *Phys. Lett. B* **387**, 125 (1996).
- [239] P. Calabrese, A. Pelissetto, und E. Vicari, *Phys. Rev. E* **65**, 046115 (2002).
- [240] M. Campostrini, M. Hasenbusch, A. Pelissetto, P. Rossi, und E. Vicari, *Phys. Rev. B* **63**, 214503 (2001).
- [241] F. Mila, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 2356 (1998).
- [242] M. Mambrini und F. Mila, *Eur. Phys. J. B* **17**, 651 (2000).
- [243] M. E. Zhitomirsky, *Phys. Rev. B* **71**, 214413 (2005).
- [244] R. Schaffer, Y. Huh, K. Hwang, und Y. B. Kim, *Phys. Rev. B* **95**, 054410 (2017).
- [245] C. Repellin, Y.-C. He, und F. Pollmann, *Phys. Rev. B* **96**, 205124 (2017).
- [246] Y. Iqbal, D. Poilblanc, R. Thomale, und F. Becca, *Phys. Rev. B* **97**, 115127 (2018).
- [247] M. Iqbal, D. Poilblanc, und N. Schuch, *Phys. Rev. B* **101**, 155141 (2020).
- [248] L. Santos, M. A. Baranov, J. I. Cirac, H.-U. Everts, H. Fehrmann, und M. Lewenstein, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 030601 (2004).
- [249] B. Damski, H. Fehrmann, H.-U. Everts, M. Baranov, L. Santos, und M. Lewenstein, *Phys. Rev. A* **72**, 053612 (2005).
- [250] P. Windpassinger und K. Sengstock, *Rep. Prog. Phys.* **76**, 086401 (2013).
- [251] G.-B. Jo, J. Guzman, C. K. Thomas, P. Hosur, A. Vishwanath, und D. M. Stamper-Kurn, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 045305 (2012).

- [252] T. H. Barter, T.-H. Leung, M. Okano, M. Block, N. Y. Yao, und D. M. Stamper-Kurn, Phys. Rev. A **101**, 011601 (2020).
- [253] M. P. A. Fisher, P. B. Weichman, G. Grinstein, und D. S. Fisher, Phys. Rev. B **40**, 546 (1989).
- [254] K. Bernardet, G. G. Batrouni, J.-L. Meunier, G. Schmid, M. Troyer, und A. Dornreich, Phys. Rev. B **65**, 104519 (2002).
- [255] R. Schaffer, A. A. Burkov, und R. G. Melko, Phys. Rev. B **80**, 014503 (2009).
- [256] S. A. Owerre, Can. J. Phys. **91**, 542 (2013).
- [257] G. Gomez-Santos und J. D. Joannopoulos, Phys. Rev. B **36**, 8707 (1987).
- [258] A. W. Sandvik und C. J. Hamer, Phys. Rev. B **60**, 6588 (1999).
- [259] K. Harada und N. Kawashima, Phys. Rev. B **55**, R11949 (1997).
- [260] H. Weber und P. Minnhagen, Phys. Rev. B **37**, 5986 (1988).
- [261] A. Sandvik und R. Melko, Ann. Phys. **321**, 1651 (2006).



Danksagung

Ich möchte mich hiermit bei all den Menschen bedanken, die mich während der Promotion unterstützt haben, denn ohne sie wäre diese Arbeit nicht möglich gewesen.

Prof. Dr. Wolfram Brenig danke ich für die interessante Aufgabenstellung und die persönliche Betreuung. Vor allem von der Geduld und der Unterstützung bei der Lösung zahlreicher Probleme konnte ich stets profitieren. Außerdem bedanke ich mich, dass sich Prof. Dr. Gertrud Zwicknagl als zweite Referentin und apl. Prof. Dr. Stefan Süllow als Vorsitz bereit erklärt haben.

Ein besonderer Dank gebührt Prof. Dr. Robin Steinigeweg und Dr. Jonas Richter für die gute Zusammenarbeit im Rahmen des Spin-1-Projekts. Daneben möchte ich Boris Celan, Leonie Heinze, Benjamin Köhler und nochmals Dr. Jonas Richter für die Co-Organisation, der jDPG und dem Fachverband Magnetismus der DPG für die Unterstützung bei der interessanten und lehrreichen Umsetzung des PhD-Symposiums danken. Mein Dank gilt weiterhin den Mitgliedern der Nachwuchsgruppe QUANOMET NP-2, insbesondere Dr.-Ing. Thilo Viereck und Maik Bertke für die interessanten Einblicke in ihre Forschungsgebiete.

Dr. Simon Großjohann, Björn Willenberg und Dr. Yousef Rahnavard haben die grundlegenden Entwicklungen des QMC-SSE- und MEM-Codes geschaffen, die im Rahmen dieser Arbeit weiterentwickelt wurden. Benjamin Köhler stand Fragen zum Verständnis und der Überprüfung der linearen Spinwellentheorie immer offen gegenüber. Weiterhin hat Dr. Jonas Richter bei Problemen mit der exakten Diagonalisierung stets ein offenes Ohr gehabt.

Danke auch an meine Kollegen meiner Arbeitsgruppe Festkörperphysik, des Instituts für Theoretische Physik und des Instituts für Mathematische Physik, die mir eine schöne Zeit beschert haben. Für Rückmeldungen beim Schreiben dieser Arbeit gilt Alexander Schwenke, Dr. Alexandros Metavitsiadis, Erik Wagner und Dr. Jonas Richter ein besonderer Dank. Außerdem danke ich Malte Lührs für das regelmäßige inspirierende Kaffeetrinken. Ich möchte auch meiner Familie danken, die mich immer begleitet und im Studium auch finanziell unterstützt hat.

Diese Arbeit wurde teilweise vom Land Niedersachsen unterstützt durch QUANOMET (Projekt NP-2). Ich danke dem Norddeutschen Verbund für Hoch- und Höchstleistungsrechnen (HLRN) für die HPC-Ressourcen, die zur teilweisen Entstehung der dargestellten Forschungsergebnisse in Kapitel 3 beigetragen haben.

